ANNALES
DE PHYSIQUE

DOUZIÈME SÉRIE
des ANNALES DE CHIMIE ET DE PHYSIQUE

ANNALES
DE PHYSIQUE

PAR MM.

MAURICE DE BROGLIE, JEAN CABANNES,

ET GUSTAVE RIBAUD

TOME 9

— 1954 —

MASSON ET Cie, ÉDITEURS
LIBRAIRES DE L'ACADÉMIE DE MÉDECINE
120, BOULEVARD SAINT-GERMAIN, PARIS, VIe

Publiées avec le concours du Centre national de la Recherche scientifique

MESURE PAR PHOTOGRAPHIE DE L'INTENSITÉ D'UNE RAIE SPECTRALE SUPERPOSÉE A UN SPECTRE CONTINU

Par J. CABANNES

SOMMAIRE. — Nous indiquons dans ces quelques pages comment doivent être interprétés les spectrogrammes fournis par un microphotomètre pour la mesure correcte des intensités.

A de nombreuses reprises (*Annales de Physique*, J. Cabannes et A. Rousset, 1933, **19**, 129 et 1940, **1**, 155, 181, 210 ; Monique Harrand, 1953, 8, 126) nous avons eu à comparer par photographie les intensités d'une même radiation monochromatique émise par deux sources de lumière. La mesure ne présente aucune difficulté si chaque source n'émet que la radiation monochromatique à étudier. C'est un problème simple de photométrie homochrome auquel convient un récepteur quelconque (couche photographique, cellule photoélectrique, etc...) ; la variation chromatique de la sensibilité du récepteur n'intervient pas. Soit I et i les intensités à comparer ($I > i$) ; on réduit, dans un rapport mesurable r, l'intensité I jusqu'à ce que l'intensité réduite rI soit égale à i, ce qu'indique le récepteur. Pour déterminer r dans le cas de la photométrie photographique on fait plusieurs poses de même durée avec la source d'intensité i puis avec la source I dont l'intensité a été réduite à r_1I, r_2I, r_3I, les facteurs de réduction étant choisis de manière à encadrer l'intensité i. On mesure au microphotomètre enregistreur les densités optiques d_1, d_2, d_3 du négatif données par chacune des intensités réduites r_1I, r_2I, r_3I. On construit alors la courbe $d=f(rI)$, les valeurs de rI étant portées sur une échelle logarithmique, et l'on cherche sur cette courbe le point qui a pour ordonnée la densité qu'avait fournie l'intensité i. A l'abscisse de ce point $rI=i$ correspond le rapport r cherché. L'interpolation est précise si les intensités réduites r_1I, r_2I, r_3I, qui doivent

encadrer l'intensité i, sont assez voisines les unes des autres et si le temps de pose est bien choisi [1].

Mais la mesure peut présenter des difficultés si une lumière complexe se superpose à la radiation à étudier. Il faut alors commencer par former les spectres des deux sources et les photographier. Supposons, pour fixer les idées, qu'on veuille déterminer le facteur de dépolarisation d'une raie Raman dans un fluide (liquide, vapeur ou gaz). Souvent un spectre continu (lumière diffusée ou de fluorescence) se superpose à la raie dont on veut étudier la dépolarisation et il est nécessaire d'éliminer l'influence de cette lumière parasite sans avoir à en connaître l'origine.

Soit j et J les intensités globales, dans chacun des deux spectres à comparer, de la raie (i, I) et du fond continu (f, F) auquel elle s'ajoute. Ce qu'on mesure, c'est le rapport de $j = i + f$ à $J = I + F$; or, ce qu'on veut obtenir, c'est le rapport i/I des intensités de la raie seule. Une première difficulté provient de ce que, si l'on réduit la valeur de I à rI de manière à obtenir une intensité de même ordre de grandeur que i, l'intensité rF du continu ainsi affaibli n'est pas forcément du même ordre de grandeur que f. Ainsi, le facteur de dépolarisation d'une raie Raman peut être inférieur à quelques dixièmes tandis que le fond continu, s'il est dû à une diffusion par des parois solides, est toujours très dépolarisé. Il en résulte que le même affaiblissement ne convient pas parfaitement à la raie et au spectre continu.

S'il s'agit de la raie Rayleigh diffusée par un gaz (ou même par un liquide) le problème devient insoluble parce qu'on ne connaît généralement pas, dans le spectre continu, le rapport entre les intensités (F, f) qu'il faudrait connaître pour les retrancher de (J, j) et

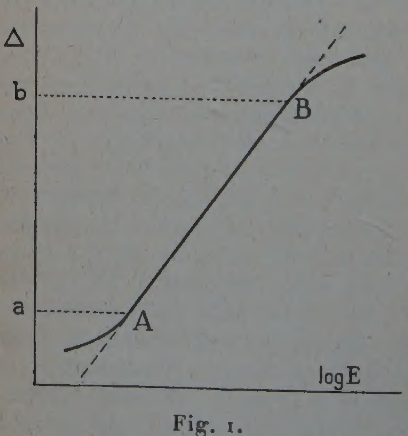


Fig. 1.

(1) Les courbes de noircissement (fig. 1) qui font connaître, pour un temps de pose donné, la densité optique d du négatif en fonction du logarithme de l'éclairement log E de la plaque sensible, les conditions du développement étant fixées, nous renseignent sur l'émulsion à choisir (celle pour laquelle l'intervalle rectiligne AB est le plus grand de part et d'autre du point d'inflexion) et le temps de pose optimum donnant des densités comprises dans l'intervalle ab.

celles des radiations très voisines, dans le fond continu, seules directement mesurables. Lorsqu'on étudie la raie Rayleigh (surtout dans le cas des gaz qui diffusent peu de lumière) il faut donc éviter toute lumière parasite et c'est ce qui rend les mesures sur la raie Rayleigh plus difficiles que sur les raies Raman.

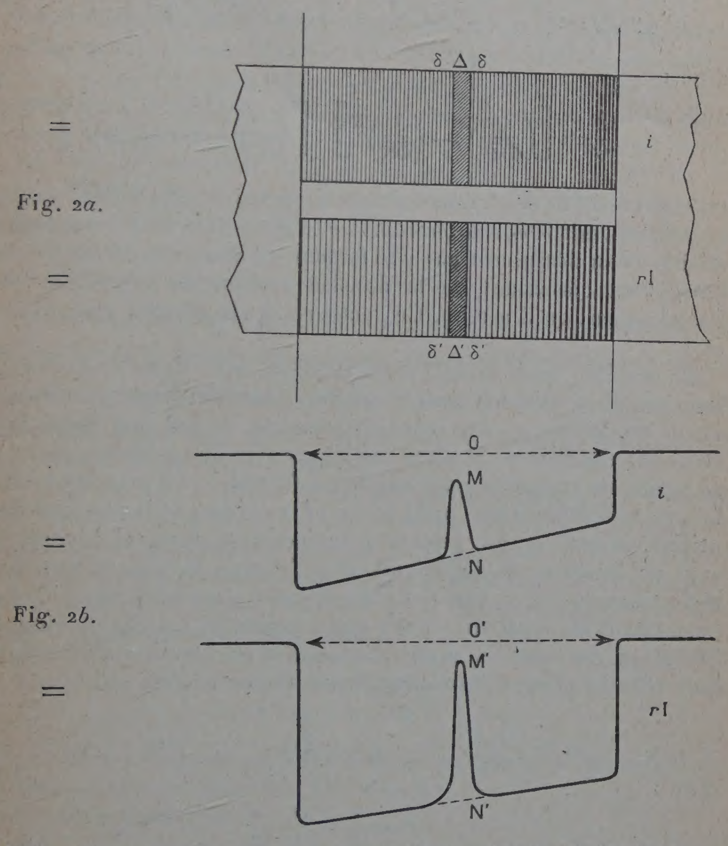


Fig. 2a.

Fig. 2b.

Ces difficultés mises à part, supposons l'intensité I réduite dans un rapport connu r choisi de telle sorte que les intensités rI et i soient peu différentes (fig. 2a). Les éclairements de la plaque photographique sont : sur la raie $(i+f)$ et $(rI+rF)$; de part et d'autre de la raie, f et rF [1]. La détermination de $r=i/I$ nécessite quatre lectures sur l'enregistrement (fig. 2b) : celles des déviations $\overline{OM}$ et $\overline{ON}$, correspon-

[1] Si l'intensité du fond continu varie légèrement de part et d'autre de la raie qu'on étudie, on adapte une valeur moyenne, facile à déterminer sur les enregistrements.

dant aux éclairements $(i+f)$ et f, et celles des déviations $\overline{O'M'}$ et $\overline{O'N'}$ correspondant aux éclairements $(rI+rF)$ et rF (fig. 2). On mesure en définitive l'intensité globale de la raie et du fond continu, puis celle du fond continu seule, et l'on a par différence celle de la raie :

$$f^\gamma \times \overline{ON} = (i+f)^\gamma \times \overline{OM} = (rI+rF)^\gamma \times \overline{O'M'} = (F)^\gamma \times \overline{O'N'}$$

d'où :

$$\frac{i}{rI} = \left[\left(\frac{1}{\overline{OM}}\right)^{\frac{1}{\gamma}} - \left(\frac{1}{\overline{ON}}\right)^{\frac{1}{\gamma}}\right] : \left[\left(\frac{1}{\overline{O'M'}}\right)^{\frac{1}{\gamma}} - \left(\frac{1}{\overline{O'N'}}\right)^{\frac{1}{\gamma}}\right]$$

en supposant la déviation du spot proportionnelle à l'éclairement du récepteur dans le microphotomètre (c'est-à-dire à la transparence du cliché) et en désignant par γ le facteur de contraste du cliché, rapport entre l'accroissement de la densité optique du négatif et celui de l'éclairement qu'il a reçu. Ce facteur est en général compris entre 1 et 3.

En réalité, pour faire l'interpolation dont nous avons parlé plus haut, on photographie quatre spectres avec les intensités i, r_1I, r_2I, r_3I et on étudie les quatre enregistrements, ce qui fait douze lectures. Dans ces conditions, il n'est pas nécessaire de connaître le facteur γ, ni même de supposer qu'il existe un facteur γ. Le problème est résolu lorsqu'on a déterminé, pour le cliché à étudier et le microphotomètre utilisé, la courbe (qui peut être quelconque) donnant la déviation du spot en fonction de l'éclairement qu'a reçu la plaque sensible. Les réductions r_1, r_2, r_3 qui ont été utilisées pour les poses d'étalonnage permettent de construire avec trois points la courbe représentant la déviation du spot du microphotomètre en fonction de l'éclairement qu'a reçu la plaque photographique. On en tire les rapports :

$$m = \frac{i+f}{I+F}, \qquad n = \frac{f}{I+F}, \qquad p = \frac{F}{I+F},$$

d'où :

$$r = \frac{i}{I} = \frac{m-n}{1-p}.$$

Nous n'avons pas parlé jusqu'ici de la manière de réaliser le facteur de réduction. Pour réduire dans un rapport connu la lumière transmise par un spectrographe à prismes, le plus simple nous paraît être de limiter plus ou moins la hauteur du premier prisme, hauteur comptée parallèlement à l'arête. La réduction peut atteindre facilement 1/10. Si l'on veut obtenir des réductions plus grandes on appliquera judicieusement la loi de Malus.

Le montage différera suivant le problème posé et la réduction qu'on veut obtenir. De toute manière, si l'on veut comparer deux lumières

dont la polarisation diffère, il faudra d'abord tenir compte du fait que les prismes du spectrographe ne réduisent pas également une vibration parallèle au plan d'incidence (perpendiculaire aux arêtes des prismes) et une vibration normale au plan d'incidence (parallèle aux arêtes). La vibration la plus réduite est la seconde. Soit à mesurer un facteur de dépolarisation. Un biréfringent séparera d'abord les deux faisceaux qui transportent : l'un, la vibration perpendiculaire aux arêtes des prismes ; l'autre, la vibration parallèle aux arêtes. Puis, sur chacun des deux faisceaux, avant la traversée des prismes, on placera une lame demi-onde : sur le premier, une lame demi-onde dont les lignes neutres seront orientées de manière à ne pas faire tourner la vibration, qui est perpendiculaire aux arêtes des prismes ; l'autre, de manière à faire tourner la vibration qui est parallèle aux arêtes. Les prismes du spectrographe agiront alors de même sur les deux faisceaux. A la sortie du spectrographe un système de deux nicols (un nicol fixe suivi d'un nicol tournant) procurera la réduction désirable si elle est supérieure à $\frac{1}{3\,000}$; un système de trois nicols (un nicol tournant entre deux nicols fixes parallèles), si elle est comprise entre $\frac{1}{3}.10^{-3}$ et 10^{-7} (Avec deux nicols $r = \sin^2 \alpha$; avec trois nicols $r = \sin^4 \alpha$; α étant l'angle dont a tourné le nicol mobile primitivement croisé avec le premier).

Lorsqu'on cherche à réduire la densité photographique par diminution du temps de pose t (procédé peu recommandable si l'on n'a pas vérifié d'abord que la densité optique du négatif est, dans les limites des mesures, proportionnelle à la seule variable $\log Jt^n$ et si l'on n'a pas déterminé avec soin l'exposant n de Schwarzschild), on peut construire les deux droites parallèles :

$$\left\{ \begin{array}{l} d = n \log t + (\log J + C) \\ d = n \log t + (\log F + C) \end{array} \right.$$

dont la distance, comptée parallèlement à l'axe des abscisses, fournira une bonne valeur de l'intensité $I = J - F$.

Deux droites analogues :

$$\left\{ \begin{array}{l} d = n \log t + (\log j + C) \\ d = n \log t + (\log f + C) \end{array} \right.$$

donnent une bonne valeur de l'intensité $i = j - f$.

D'où le rapport $r = i/I$.

Les méthodes précisées dans ces quelques pages doivent être rigoureusement appliquées à l'étude par photographie de la diffusion moléculaire de la lumière. Bien que ces remarques paraissent évidentes elles ont été trop souvent méconnues.

SUR LA DÉTERMINATION SIMULTANÉE DES CONSTANTES OPTIQUES ET DE L'ÉPAISSEUR DES LAMES MINCES ABSORBANTES [1]

Par D. MALÉ

Agrégé de l'Université.

INTRODUCTION

La plupart des auteurs qui se sont occupés de la détermination des constantes optiques des corps absorbants déposés en lames minces se sont contentés, jusqu'à présent, de repérer l'épaisseur de la lame d'une manière indirecte en pesant le dépôt et en attribuant à ce dernier une densité constante et égale à celle du corps massif. Les constantes optiques étaient déduites de la mesure des facteurs de réflexion et du facteur de transmission de la lame en incidence normale en utilisant le procédé graphique de H. Murmann (1) ou en employant les formules approchées de H. Wolter (2). L'hypothèse faite sur la densité du dépôt n'étant pas conforme à la réalité conduit, comme nous le montrerons, à des erreurs importantes sur les valeurs des constantes optiques.

Le premier essai de détermination *simultanée* des constantes optiques et de l'épaisseur des lames minces absorbantes, non opaques, a été fait par K. Försterling (3). Cet auteur employait une méthode polarimétrique. Il faisait tomber sous l'incidence brewstérienne un faisceau de lumière monochromatique polarisé rectilignement dans un plan faisant un angle de 45° avec le plan d'incidence et il étudiait la lumière elliptique obtenue par réflexion et par trans-

(1) Thèse présentée le 27 mars 1953 à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques.

mission. Malheureusement les déterminations faites par cette méthode ont conduit à des valeurs imaginaires pour les épaisseurs. Cela est dû, vraisemblablement, au fait que l'on opérait en incidence oblique. Dans ces conditions il eût fallu tenir compte de l'anisotropie des lames et cela était difficile. Aussi, pour éviter ces complications paraît-il préférable d'effectuer toutes les mesures en incidence normale.

Le problème de la détermination *simultanée* des constantes optiques et de l'épaisseur des lames minces absorbantes, au moyen de mesures effectuées uniquement en incidence normale, n'avait pas encore été abordé à ma connaissance. J'ai donné une solution à ce problème en utilisant une méthode graphique (4). Postérieurement à mes premiers résultats, H. Schopper (5) a essayé de résoudre le même problème par le calcul.

Mon intention est d'exposer la nouvelle méthode de détermination simultanée des constantes optiques et de l'épaisseur que j'ai mise au point; d'en donner une application en utilisant des mesures faites sur des lames d'argent et d'or préparées par pulvérisation cathodique ou par évaporation thermique; puis de comparer les résultats obtenus à ceux donnés par les auteurs qui se sont occupés précédemment de cette question.

PREMIÈRE PARTIE

THÉORIE

CHAPITRE PREMIER

EXPRESSION DES FACTEURS DE RÉFLEXION ET DE TRANSMISSION D'UNE LAME ISOTROPE A FACES PLANES ET PARALLÈLES

Considérons trois milieux isotropes séparés par deux surfaces planes et parallèles (fig. 1). Ces milieux sont numérotés 0, 1, 2, dans le sens de propagation de la lumière incidente. Prenons comme plan des xy, la surface de séparation des deux premiers milieux ; comme axe des x l'intersection de ce plan avec le plan d'incidence, et comme

axe des z la normale au plan xy, le sens positif de cet axe, étant le sens de la lumière incidente.

Désignons par n_0, n_1, n_2 les indices des milieux; par i_0, i_1, i_2 les angles des rayons avec l'axe des z; par d_1 la distance des deux surfaces de séparation des trois milieux.

Considérons des ondes électromagnétiques incidentes sinusoïdales planes, polarisées rectilignement. Ces ondes sont caractérisées par un vecteur champ électrique $\vec{E}$ et par un vecteur champ magnétique $\vec{H}$, liés par les équations de Maxwell :

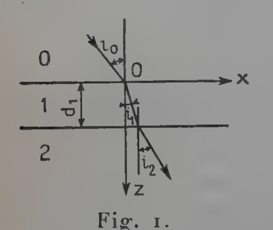


Fig. 1.

$$\text{rot}\,\vec{H} = \frac{\varepsilon}{c}\frac{\partial \vec{E}}{\partial t}$$

$$\text{rot}\,\vec{E} = -\frac{\mu}{c}\frac{\partial \vec{H}}{\partial t}.$$

Posons $\mu = 1$ et $n = \varepsilon^2$, n étant l'indice de réfraction absolu du milieu dans lequel se propagent les ondes.

Ces vecteurs orthogonaux sont situés dans le plan d'onde. Le rapport des amplitudes est égal à l'indice de réfraction du milieu considéré.

La vitesse de propagation de l'onde est égale à la vitesse de propagation dans le vide c divisé par l'indice de réfraction du milieu considéré.

Les ondes qui se propagent à travers les différents milieux subissent des réflexions et des réfractions multiples aux surfaces de séparation. Pour chaque milieu nous représentons séparément la résultante des ondes se dirigeant vers les z positifs et vers les z négatifs. En utilisant la notation imaginaire nous avons pour le premier milieu :

Onde incidente :

$$E_{0i} = a_0 e^{j\omega\left[t - \frac{n_0}{c}(x \sin i_0 + z \cos i_0)\right]}$$

$$H_{0i} = n_0 a_0 e^{j\omega\left[t - \frac{n_0}{c}(x \sin i_0 + z \cos i_0)\right]}.$$

Onde réfléchie :

$$E_{0r} = b_0 e^{j\omega\left[t - \frac{n_0}{c}(x \sin i_0 - z \cos i_0)\right]}$$

$$H_{0r} = n_0 b_0 e^{j\omega\left[t - \frac{n_0}{c}(x \sin i_0 - z \cos i_0)\right]}$$

pour le second milieu :

Onde incidente :

$$E_{1i} = a_1 e^{j\omega\left[t - \frac{n_1}{c}(x \sin i_1 + z \cos i_1)\right]}$$

$$H_{1i} = n_1 a_1 e^{j\omega\left[t - \frac{n_1}{c}(x \sin i_1 + z \cos i_1)\right]}.$$

Onde réfléchie :

$$E_{1r} = b_1 e^{j\omega\left[t - \frac{n_1}{c}(x \sin i_1 - z \cos i_1)\right]}$$

$$H_{1r} = n_1 b_1 e^{j\omega\left[t - \frac{n_1}{c}(x \sin i_1 - z \cos i_1)\right]}$$

et pour le troisième milieu, onde incidente seulement :

$$E_{2i} = a_2 e^{j\omega\left[t - \frac{n_2}{c}(x \sin i_2 + z \cos i_2)\right]}$$

$$H_{2i} = n_2 a_2 e^{j\omega\left[t - \frac{n_2}{c}(x \sin i_2 + z \cos i_2)\right]}$$

où ω représente la pulsation, a_0, b_0, a_1, b_1, a_2 les amplitudes des ondes réfléchies et transmises respectivement dans les milieux 0, 1 et 2.

Pour avoir les relations qui donnent toutes les inconnues, c'est-à-dire les amplitudes des ondes b_0, b_1, a_1, a_2 et les angles i_1, i_2 en fonction des quantités connues a_0, i_0, n_0, n_1, n_2, il faut écrire les équations de passage à travers les surfaces de séparation des différents milieux.

Sur les surfaces de séparation ces conditions doivent être remplies quelles que soient la valeur du temps t et la valeur de x ; il s'ensuit que les coefficients de t et de x sont constants, c'est-à-dire que la pulsation ω reste la même et que l'on a les relations de Descartes :

$$n_0 \sin i_0 = n_1 \sin i_1 = n_2 \sin i_2.$$

Les équations de passage utilisées expriment la continuité de la composante, sur la surface de séparation, du vecteur champ électrique et du vecteur champ magnétique. Il faut examiner séparément les cas de l'onde incidente polarisée dans l'un et l'autre des azimuts principaux.

Si le champ électrique est perpendiculaire au plan d'incidence :

$$E_x = 0, \qquad E_z = 0, \qquad E_y = E, \qquad \frac{1}{c}\frac{\partial H_x}{\partial t} = \frac{\partial E}{\partial z}$$

le champ électrique reste continu à la traversée de chaque surface de séparation des milieux ainsi que $\frac{\partial E}{\partial z}$.

Si le champ électrique est dans le plan d'incidence :

$$H_x = 0, \qquad H_z = 0, \qquad H_y = H, \qquad \frac{n^2}{c}\frac{\partial E_x}{\partial t} = -\frac{\partial H}{\partial z}$$

le champ magnétique reste continu à la traversée de chaque surface de séparation des milieux ainsi que $\frac{1}{n^2}\frac{\partial H}{\partial z}$.

Dans les deux cas on obtient finalement les relations :

$$\frac{b_0}{a_0} = A_r e^{j\Delta r} = \frac{r_1 + r_2 e^{-4\pi j n_1 \frac{d_1}{\lambda}\cos i_1}}{1 + r_1 r_2 e^{-4\pi j n_1 \frac{d_1}{\lambda}\cos i_1}}$$

$$\frac{a_2}{a_0} = A_t e^{j\Delta t} = \frac{(1+r_1)(1+r_2) e^{-2\pi j n_1 \frac{d_1}{\lambda}\cos i_1} e^{2\pi j n_2 \frac{d_1}{\lambda}\cos i_2}}{1 + r_1 r_2 e^{-4\pi j n_1 \frac{d_1}{\lambda}\cos i_1}}$$

où r_1 et r_2 sont les facteurs de réflexion de Fresnel aux intersurfaces 0-1 et 1-2 :

$$r_{1\perp} = \frac{n_0 \cos i_0 - n_1 \cos i_1}{n_0 \cos i_0 + n_1 \cos i_1} \qquad r_{2\perp} = \frac{n_1 \cos i_1 - n_2 \cos i_2}{n_1 \cos i_1 + n_2 \cos i_2}$$

$$r_{1\parallel} = \frac{n_1 \cos i_0 - n_0 \cos i_1}{n_1 \cos i_0 + n_0 \cos i_1} \qquad r_{2\parallel} = \frac{n_2 \cos i_1 - n_1 \cos i_2}{n_2 \cos i_1 + n_1 \cos i_2}.$$

et λ la longueur d'onde dans le vide de la radiation monochromatique considérée.

Ces relations permettent de calculer les amplitudes A et les changements de phase Δ.

Pour passer des amplitudes aux intensités on utilise la relation $I = \frac{c}{8\pi} n A^2$. C'est-à-dire que le facteur de réflexion R est égal au carré du module de $\frac{b_0}{a_0}$ et le changement de phase Δ_r à l'argument du même rapport; le facteur de transmission T est égal au produit du carré du module de $\frac{a_2}{a_0}$ par le rapport $\frac{n_2}{n_0}$ des indices des milieux extrêmes.

Si on inverse le sens de propagation de la lumière les valeurs des coefficients de Fresnel changent. Désignons ces nouvelles valeurs par des lettres primées, on a :

$$r'_1 = -r_2 \qquad \text{et} \qquad r'_2 = -r_1.$$

On vérifie facilement que le facteur de transmission est indépendant du sens de propagation de la lumière.

Pour appliquer ces formules au cas d'une lame mince absorbante il faut admettre que la lame est homogène et qu'elle est limitée par des faces planes et parallèles. Nous supposerons que le premier

milieu est de l'air, le troisième milieu, support de la lame mince absorbante, du verre; n_0 et n_2 sont réels; l'indice du corps absorbant en lame mince est représenté symboliquement par $n_1 = \nu_1 - j\varkappa_1$, ν_1 étant l'indice de réfraction et $\varkappa_1$ l'indice d'extinction.

Les équations donnent en *incidence normale*, pour la réflexion dans l'air :

$$\frac{b_0}{a_0} = \mathrm{A}_r e^{j\Delta_r} = \frac{r_1 + r_2 e^{-k_1\delta} e^{-j\delta}}{1 + r_1 r_2 e^{-k_1\delta} e^{-j\delta}}$$

pour la réflexion dans le verre :

$$\frac{b'_0}{a_0} = \mathrm{A}_{r'} e^{j\Delta_{r'}} = -\frac{r_2 + r_1 e^{-k_1\delta} e^{-j\delta}}{1 + r_1 r_2 e^{-k_1\delta} e^{-j\delta}}$$

pour la transmission :

$$\frac{a_2}{a_0} = \mathrm{A}_t e^{j\Delta_t} = \frac{(1 + r_1)(1 + r_2) e^{-k_1 \frac{\delta}{2}} e^{-j\frac{\delta}{2}} e^{2\pi j n_2 \frac{d_1}{\lambda}}}{1 + r_1 r_2 e^{-k_1\delta} e^{-j\delta}}$$

avec :

$$r_1 = \frac{n_0 - n_1}{n_0 + n_1}, \qquad r_2 = \frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2}, \qquad k_1 = \frac{\varkappa_1}{\nu_1}, \qquad \delta = 4\pi\nu_1 \frac{d_1}{\lambda} = 4\pi \frac{d_1}{\lambda_m}$$

k_1 étant le coefficient d'absorption et λ_m la longueur d'onde dans la lame.

Ces expressions permettent de calculer l'amplitude A et le changement de phase Δ que subit une onde lumineuse en se réfléchissant normalement sur la lame à étudier ou en la traversant. Toutefois, ce que l'on mesure, c'est seulement la différence de phase φ entre cette onde et celle qui passe à côté de la lame directement de l'air dans le verre ou du verre dans l'air. On a les relations suivantes :

$$\varphi_r = \Delta_r - \pi + 4\pi n_0 \frac{d_1}{\lambda}$$

$$\varphi_{r'} = \Delta_{r'}$$

$$\varphi_t = \Delta_t + 2\pi n_0 \frac{d_1}{\lambda} - 2\pi n_2 \frac{d_1}{\lambda}$$

et les équations deviennent, pour la réflexion dans l'air :

$$\mathcal{R} = \mathrm{A}_r e^{j\varphi_r} = -\frac{e^{j\gamma}(r_1 + r_2 e^{-k_1\delta} e^{-j\delta})}{1 + r_1 r_2 e^{-k_1\delta} e^{-j\delta}}$$

pour la réflexion dans le verre :

$$\mathcal{R}' = \mathrm{A}_{r'} e^{j\varphi_{r'}} = -\frac{r_2 + r_1 e^{-k_1\delta} e^{-j\delta}}{1 + r_1 r_2 e^{-k_1\delta} e^{-j\delta}}$$

pour la transmission :

$$\mathcal{T} = \mathrm{A}_t e^{j\varphi_t} = \frac{e^{j\frac{\gamma}{2}}(1 + r_1)(1 + r_2) e^{-k_1 \frac{\delta}{2}} e^{-j\frac{\delta}{2}}}{1 + r_1 r_2 e^{-k_1\delta} e^{-j\delta}}$$

en posant :

$$\gamma = 4\pi n_0 \frac{d_1}{\lambda} = n_0 \frac{\delta}{\nu_1}.$$

Comme l'a fait récemment Schopper (5) on peut résoudre ces trois équations transcendantes par rapport aux inconnues n_1 et d_1. On obtient :

$$e^{-k_1\delta} e^{-j\delta} = -\frac{\mathcal{R}' + r_2}{r_1(1 + r_2\mathcal{R}')}$$

$$n_1^2 = n_2 \frac{n_2^2\mathcal{R}(1 - \mathcal{R}')^2 + n_0\mathcal{T}^2[n_0 - n_2(1 - \mathcal{R}')]}{n_2\mathcal{R}(1 + \mathcal{R}')^2 - \mathcal{T}^2[n_2 - n_0(1 + \mathcal{R}')]}.$$

La détermination par la méthode de Schopper des constantes optiques et de l'épaisseur de la lame exige donc la mesure des deux facteurs de réflexion, du facteur de transmission et des trois changements de phase correspondants.

Dans le cas des lames très minces on peut développer en série les fonctions exponentielles des équations ci-dessus. En négligeant les termes à la quatrième puissance on obtient les relations de Wolter (2).

$$4\pi\nu_1\varkappa_1 \frac{d_1}{\lambda} = \frac{n_0 n_2}{n_2 - n_0} \frac{R - R'}{T} = n_0 \frac{1 - R' - T}{T} = n_2 \frac{1 - R - T}{T}$$

$$\nu_1^2 - \varkappa_1^2 = \frac{n_0^2 + n_2^2}{2} \pm \frac{1}{2\pi \frac{d_1}{\lambda}} \sqrt{2 n_0 n_2 \frac{R + R'}{T} - (n_0 - n_2)^2 - \left(4\pi\nu_1\varkappa_1 \frac{d_1}{\lambda}\right)^2 + \frac{\pi^2 d_1^2}{\lambda^2}(n_0^2 - n_2^2)}$$

Si on connaissait l'épaisseur de la lame ces formules permettraient de calculer les constantes optiques : cependant il subsisterait une indétermination car il n'est pas possible de savoir quel est le signe de la racine qu'il faut prendre.

On remarque qu'à ce degré d'approximation, les équations ne sont plus indépendantes les unes des autres. Il existe la relation suivante entre les intensités réfléchies et transmises.

$$n_0(1 - R' - T) = n_2(1 - R - T).$$

Lorsque cette identité est vérifiée, à la précision des mesures près, on ne peut plus déterminer les trois inconnues en utilisant uniquement les trois mesures d'intensité donnant R, R' et T, il faut y joindre des mesures de phase.

En négligeant les termes quadratiques, on arrive à deux identités pour les intensités et à deux identités pour les phases. On a alors trop peu d'éléments indépendants pour déterminer les trois inconnues. *Donc, dans le cas des lames absorbantes les plus minces, on ne peut pas déterminer séparément les indices et l'épaisseur.*

CHAPITRE II

NOUVELLE MÉTHODE GRAPHIQUE DE DÉTERMINATION SIMULTANÉE DES CONSTANTES OPTIQUES ET DE L'ÉPAISSEUR DES LAMES MINCES ABSORBANTES

Pour résoudre ce problème (4) nous avons tracé systématiquement les courbes donnant, pour différentes valeurs possibles des indices de réfraction et d'extinction, les variations des facteurs de réflexion dans l'air R et dans le verre R′, du facteur de transmission T et des changements de phase à la réflexion correspondants Δ et Δ' en fonction de la quantité $\delta = 4\pi\nu_1 \frac{d_1}{\lambda}$.

Partant de la valeur expérimentale de T, par exemple, on lit sur

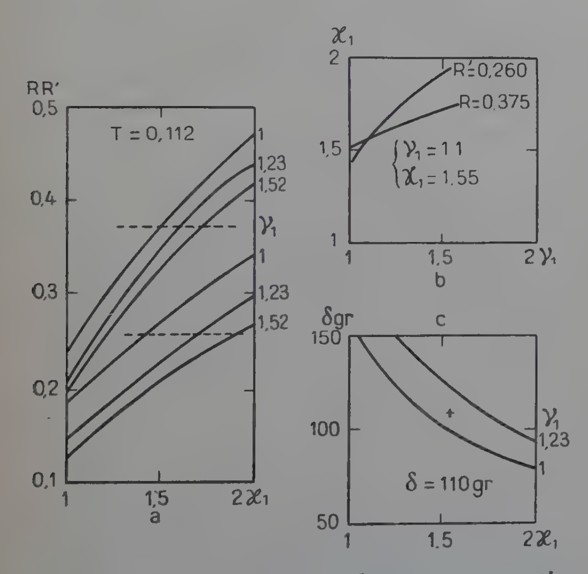


Fig. 2. *a*, *b*, *c*. — Détermination des constantes optiques et de l'épaisseur.

les courbes tracées pour diverses valeurs de ν_1 et de $\varkappa_1$, les valeurs R, R′ et δ qui devraient théoriquement lui correspondre. On trace ensuite, en fonction de ν_1 pour différentes valeurs de $\varkappa_1$, ou en fonction de $\varkappa_1$

pour différentes valeurs de ν_1, les réseaux de courbes donnant les variations de R (fig. 2*a*).

On détermine sur ce graphique les valeurs de ν_1 et de $\varkappa_1$ qui donnent un facteur de réflexion dans l'air R égal à la valeur trouvée expérimentalement. On obtient ainsi des couples de valeurs possibles pour ν_1 et $\varkappa_1$ correspondant à une valeur donnée du facteur de transmission. Cela permet de tracer la courbe reliant les valeurs de ν_1 et de $\varkappa_1$ convenables (fig. 2*b*).

On fait la même opération pour R′. On obtient une autre courbe. Le point d'intersection de ces deux courbes fournit le couple de valeurs ν_1 et $\varkappa_1$ satisfaisant à la fois aux valeurs de T, R et R′ trouvées expérimentalement.

Pour déterminer l'épaisseur on trace, en fonction de ν_1 pour différentes valeurs de $\varkappa_1$ ou en fonction de $\varkappa_1$ pour différentes valeurs de ν_1, les réseaux de courbes donnant les variations de δ. Par interpolation simple on trouve la valeur convenable de δ ; on en déduit d_1 (fig. 2*c*).

J'ai exposé ma nouvelle méthode en utilisant les mesures de R, R′ et T. Il est évidemment possible de remplacer R, R′ ou T par l'un des changements de phase à la réflexion normale. On a ainsi des vérifications et on peut contrôler la validité des hypothèses servant de base à la théorie des lames minces (lame homogène, limitée par deux surfaces planes et parallèles).

Toutefois, comme nous l'avons vu, il est des cas où, pour la détermination des constantes optiques et de l'épaisseur par cette méthode, un choix entre ces diverses grandeurs s'avère nécessaire parce que des relations approchées apparaissent entre elles, ce qui les rend dépendantes les unes des autres. En particulier, lorsque les lames ont une faible épaisseur, H. Wolter [2] a établi qu'il existe entre R, R′ et T la relation :

$$n_0(1 - R' - T) \doteq n_2(1 - R - T).$$

H. Wolter admet qu'au degré de précision des mesures cette relation est satisfaite lorsque $\frac{d_1}{\lambda} < 0{,}027$.

Pour déterminer le degré d'approximation de cette relation, j'ai tracé les courbes donnant, pour différentes valeurs des constantes optiques, les variations, avec l'épaisseur de la lame, des deux membres de l'identité, en prenant $n_0 = 1$ et $n_2 = 1{,}52$. (Voir chap. IV, § 5).

Si on admet que, par suite des erreurs expérimentales, les mesures de R, R′ et T sont faites avec une erreur absolue de l'ordre de 0,005, on obtient, pour les épaisseurs limites au-dessous desquelles la relation de Wolter est pratiquement vérifiée, les valeurs données par le tableau suivant. (Les épaisseurs limites sont exprimées en fraction de la longueur d'onde dans le vide de la radiation utilisée).

ν_1 / $\varkappa_1$	0,2	0,5	1	2	4
0,5	0,062	0,050	0,047	0,037	0,015
1	0,062	0,037	0,041	0,037	0,031
2	0,047	0,025	0,029	0,031	0,023
4	∞	0,088	0,037	0,034	0,027

On constate qu'effectivement la relation de Wolter est toujours vérifiée pour les épaisseurs telles que $\frac{d_1}{\lambda} < 0{,}027$. Mais, de plus, la relation de Wolter peut très bien être aussi vérifiée pour des épaisseurs beaucoup plus grandes. En particulier, pour $\nu_1 = 0{,}2$ et $\varkappa_1 = 4$ (constantes optiques voisines de celles de l'argent pour les radiations du spectre visible) la relation est toujours vérifiée quelle que soit l'épaisseur. D'une manière plus générale la relation de Wolter est d'autant mieux vérifiée que le coefficient d'absorption $k_1 = \frac{\varkappa_1}{\nu_1}$ est plus grand.

Des mesures faites sur des lames d'argent pour les radiations du spectre visible et sur des lames d'or pour les radiations de longueur d'onde supérieure à 5500 Å confirment cette conclusion. Dans ces cas, pour déterminer simultanément les constantes optiques et l'épaisseur d'une lame, il faut utiliser une mesure de changement de phase.

Tout récemment, comme je l'ai déjà signalé, H. Schopper (5) a mis au point une méthode intéressante utilisant à la fois six mesures, trois mesures d'intensité et trois mesures de changement de phase. La nouvelle méthode que je viens d'exposer permet d'arriver au même résultat avec trois mesures seulement, mais il faut convenablement choisir ces mesures comme je viens de le montrer.

CHAPITRE III

MÉTHODE GRAPHIQUE DE CALCUL DES FACTEURS DE RÉFLEXION ET DE TRANSMISSION

Pour appliquer cette nouvelle méthode de détermination simultanée des constantes optiques et de l'épaisseur des lames minces absorbantes, il est indispensable de calculer un très grand nombre de valeurs des facteurs de réflexion et de transmission. Pour opérer rapidement nous avons utilisé des procédés graphiques de calcul (6).

Tout d'abord, pour calculer les coefficients de réflexion de Fresnel aux intersurfaces, nous posons :

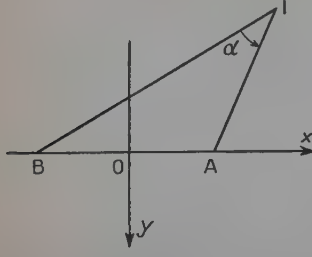


Fig. 3.

$$r_1 = -\frac{\frac{n_1}{n_0} - 1}{\frac{n_1}{n_0} + 1} = -\rho_1 e^{j\alpha_1}$$

$$r_2 = \frac{\frac{n_1}{n_2} - 1}{\frac{n_1}{n_2} + 1} = \rho_2 e^{j\alpha_2}$$

d'où pour r_1 la construction suivante (fig. 3). Dans le plan de la variable complexe on marque les points A(+ 1), B(— 1), et $I\left(\frac{n_1}{n_0}\right)$, et l'on obtient :

$$\rho_1 = \frac{\overline{IA}}{\overline{IB}}, \qquad \alpha_1 = \widehat{IB, IA}.$$

Les lieux des points du plan tels que ρ_1 et α_1 soient constants sont des circonférences. Les deux familles de circonférences sont orthogonales (fig. 4). En portant sur cet abaque le point I de coordonnées $\frac{\nu_1}{n_0}$

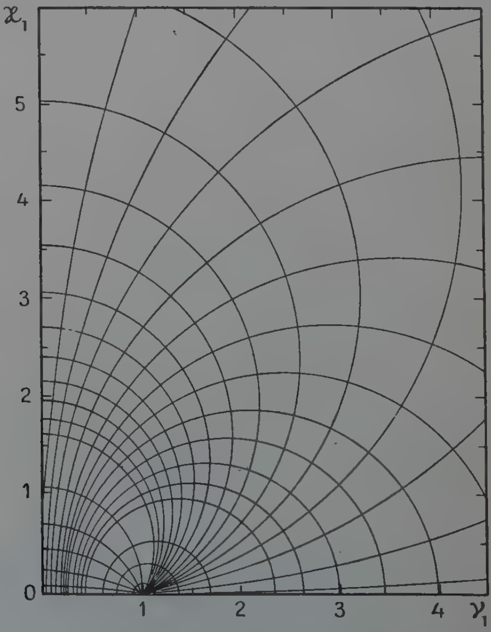


Fig. 4. — Principe de l'abaque pour la détermination des coefficients de réflexion de Fresnel en incidence normale.

et $\frac{\varkappa_1}{n_0}$, on obtient immédiatement, par simple lecture ρ_1 et α_1. On opère de même pour r_2.

Pour déterminer ensuite le facteur de réflexion de la lame nous posons :

$$\frac{b_0}{a_0} = \frac{1}{r_1} \frac{\frac{r_1}{r_2} + e^{-k_1\delta} e^{-j\delta}}{\frac{1}{r_1 r_2} + e^{-k_1\delta} e^{-j\delta}} = \frac{1}{r_1} \mathrm{P} e^{j\theta}.$$

Dans le plan de la variable complexe, on porte les points :

$$\mathrm{N}\left(\frac{r_1}{r_2}\right), \qquad \mathrm{D}\left(\frac{1}{r_1 r_2}\right), \qquad \mathrm{E}(-e^{-k_1\delta} e^{-j\delta})$$

et l'on obtient (fig. 5) :

$$\mathrm{P} = \frac{\overline{\mathrm{EN}}}{\overline{\mathrm{ED}}}, \qquad \Theta = \widehat{\mathrm{ED}, \mathrm{EN}}.$$

On en déduit :

$$\mathrm{R} = \left(\frac{\mathrm{P}}{\rho_1}\right)^2 \qquad \text{et} \qquad \Delta_r = \Theta - \alpha_1.$$

Quand δ varie, en même temps que l'épaisseur de la lame, le point E décrit une spirale logarithmique (7). Si l'on inverse le sens de propagation de la lumière le point D reste fixe, mais le point N vient en N′ en se rapprochant de la spirale logarithmique ; N et N′ sont les images de deux nombres complexes inverses l'un de l'autre.

On peut déterminer aussi, à l'aide de ce graphique, le facteur de transmission. En effet, on peut écrire :

$$\mathrm{T} = \mathrm{K}\left[\frac{e^{-k_1 \frac{\delta}{2}}}{\overline{\mathrm{ED}}}\right]^2.$$

la valeur de la constante K est calculée en prenant la valeur connue T = 0,958 correspondant à $\delta = 0$.

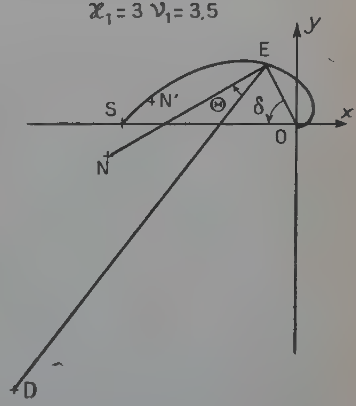


Fig. 5. — Détermination graphique de R, R′, T, Δ et Δ′.

Le changement de phase relatif s'obtient en mesurant l'angle $\widehat{\mathrm{DS}, \mathrm{DE}}$, on a :

$$\varphi_t = -\widehat{\mathrm{DS}, \mathrm{DE}} - \frac{\delta}{2} + 2\pi n_0 \frac{d_1}{\lambda} = -\widehat{\mathrm{DS}, \mathrm{DE}} + 2\pi(n_0 - \nu_1)\frac{d_1}{\lambda}.$$

En prenant $OS = 10$ cm., l'erreur possible est de l'ordre de quelques unités de la troisième décimale pour R, R', T et de quelques grades pour les changements de phase. Ceci est de l'ordre de grandeur des erreurs de mesure.

CHAPITRE IV

ÉTUDE DES PROPRIÉTÉS OPTIQUES DES LAMES MINCES ABSORBANTES

Les variations des diverses grandeurs mesurables avec l'épaisseur de la lame sont très difficiles à analyser au moyen des formules, car l'épaisseur intervient à la fois dans des lignes trigonométriques et dans des exponentielles. Pour les étudier, il faut tracer les courbes représentatives. La méthode graphique exposée ci-dessus permet de le faire rapidement.

Les figures 6 à 9 donnent, sous forme de réseaux, les variations des facteurs de réflexion R et R', du facteur de transmission T, et des changements de phase par réflexion Δ et Δ' pour différentes valeurs des indices de réfraction et d'extinction de la lame, en supposant le dépôt effectué sur un support en crown léger d'indice $n_2 = 1{,}52$, le premier milieu étant de l'air ($n_0 = 1$). Les changements de phase Δ, Δ' sont exprimés en grades ; le signe + indique une avance, le signe — un retard ; il s'agit des différences de phase entre l'onde réfléchie sur la lame et l'onde réfléchie sur l'intersurface air-verre ou verre-air, l'épaisseur de la lame étant nulle, c'est-à-dire que l'on a :

$$\Delta = \Delta - \pi \qquad \text{et} \qquad \Delta' = \Delta_{r'}.$$

L'examen de ces réseaux de courbes permet de mettre en évidence toutes les propriétés optiques, si curieuses parfois, des lames minces ; propriétés que je vais résumer rapidement.

§ **1. Facteurs de réflexion.** — Lorsque le coefficient d'absorption $k_1 = \frac{\varkappa_1}{\nu_1}$ est petit (nettement inférieur à 1) les courbes donnant les variations des facteurs de réflexion présentent des ondulations (par exemple pour $\varkappa_1 = 0{,}5$ et $\nu_1 = 4$). A mesure que k_1 croît les ondulations disparaissent progressivement ; il subsiste un maxi-

mum qui disparaît pour les fortes valeurs de k_1. Ce maximum du facteur de réflexion est obtenu pour une épaisseur inférieure au quart de la longueur d'onde dans la lame, l'écart étant d'autant plus important que k_1 est plus grand. De plus, le facteur de réflexion dans le verre présente, lorsque k_1 n'est pas trop grand, un minimum plus ou moins bien marqué. En effet, sur le graphique, N' est près de la spirale logarithmique ; ce minimum est nul lorsque N' est sur la spirale (par exemple pour $\varkappa_1 = 4$ et $\nu_1 = 4$). La condition pour avoir un minimum nul est :

$$r_1 = r_2 e^{-k_1\delta} e^{-j\delta}.$$

Ce minimum prévu par le calcul pour le platine par F. Kaempf (8) a été observé effectivement pour la première fois par P. Rouard (9) pour l'or et l'argent déposés par projection cathodique.

Le facteur de réflexion dans le verre R' est généralement plus petit que le facteur de réflexion dans l'air ; mais il peut-être supérieur. Ceci se produit lorsque ρ_2 est plus grand que ρ_1, c'est-à-dire lorsque $\varkappa_1$ et ν_1 sont assez petits (par exemple pour $\varkappa_1 = 0{,}5$ et $\nu_1 = 0{,}2$). Ce chevauchement des courbes donnant R et R' a été observé par F. Goos (10) avec l'argent déposé sur de la silice amorphe pour $\lambda = 3\,660$ Å. Il a été expliqué pour la première fois par P. Rouard et M. Perrot (11).

§ 2. Changements de phase par réflexion. — Ces phénomènes intéressent en particulier les métrologistes. En effet, ils influent sur la longueur optique des étalons interférentiels.

Le changement de phase relatif Δ par réflexion dans l'air est toujours un retard pour les fortes épaisseurs. Pour les faibles valeurs du coefficient d'absorption k_1 on observe d'abord pour les faibles épaisseurs une avance qui lorsque l'épaisseur croît passe par un maximum, décroît et s'annule ; puis on observe un retard qui passe par un maximum peu marqué (par exemple pour $\varkappa_1 = 2$ et $\nu_1 = 4$). Pour les fortes valeurs du coefficient d'absorption k_1 on a un retard, croissant avec l'épaisseur.

Les constantes optiques variant avec la longueur d'onde ces changements de phase varient aussi. Les variations sont complexes et il est difficile, sinon impossible, de tracer une courbe continue donnant les variations du changement de phase avec la longueur d'onde pour une épaisseur de lame donnée, surtout si cette épaisseur est très faible. Il est donc prudent, dans l'application de la méthode des coïncidences, avec l'interféromètre de Pérot-Fabry par exemple, de mesurer les changements de phase pour chaque radiation utilisée.

Le changement de phase Δ' par réflexion normale dans le verre est,

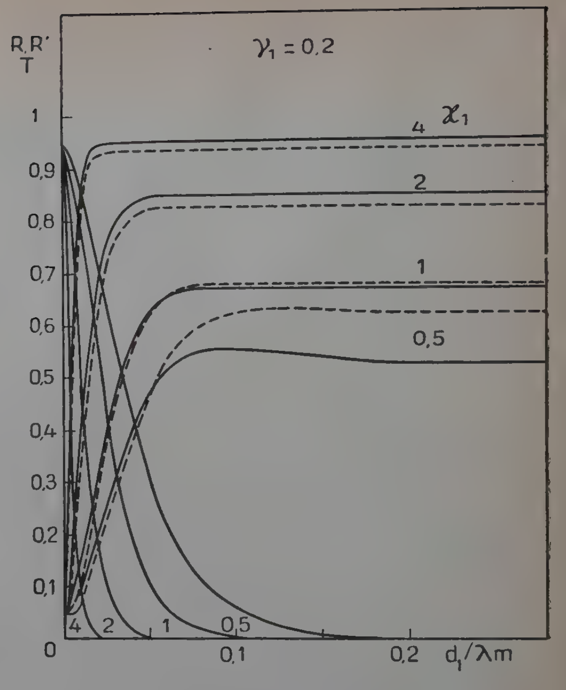


Fig. 6. — Variations de R, R′, T pour $\nu_1 = 0{,}2$ et $\chi_1 = 0{,}5 — 1 — 2 — 4$. (R′ en traits discontinus).

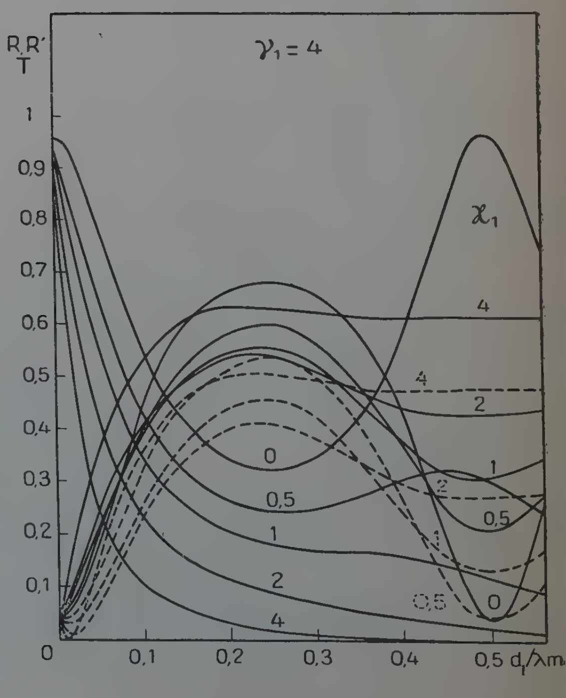


Fig. 7. — Variations de R, R′, T pour $\nu_1 = 4$ et $\chi_1 = 0 — 0{,}5 — 1 — 2 — 4$. (R′ en traits discontinus).

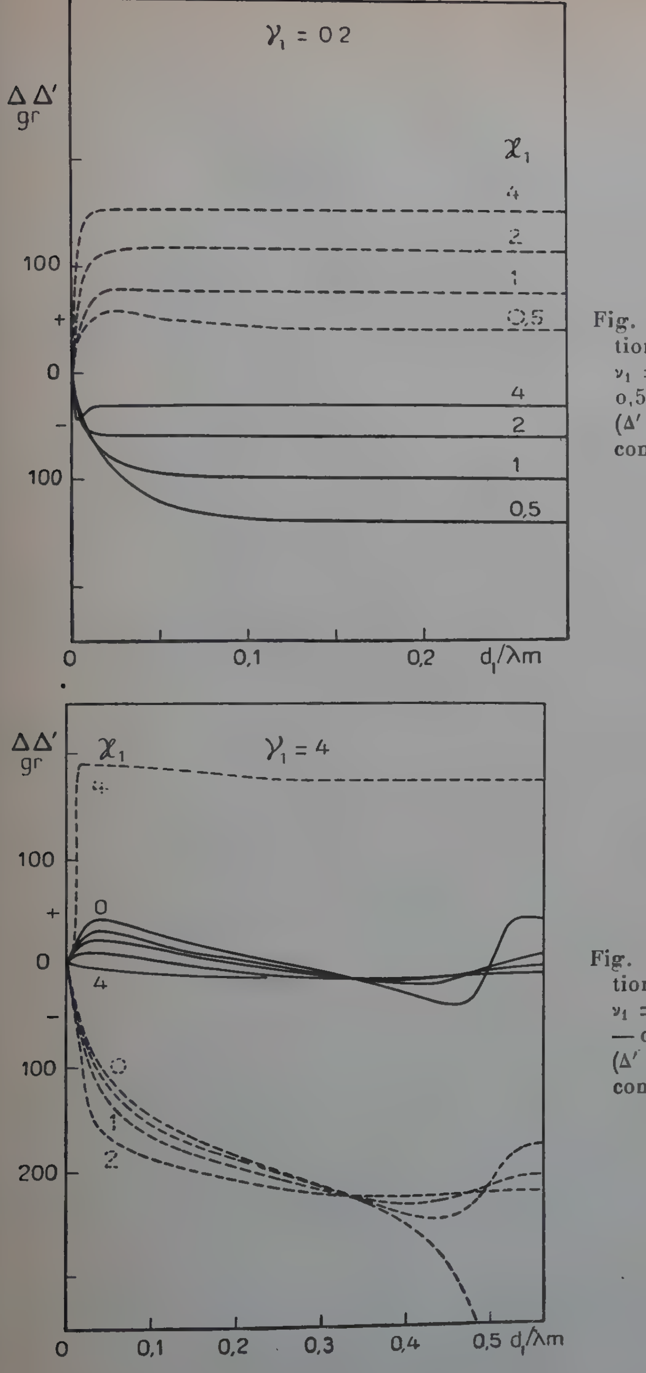


Fig. 8. — Variations de Δ, Δ′ pour $\nu_1 = 0,2$ et $\chi_1 = 0,5 - 1 - 2 - 4$. (Δ′ en traits discontius).

Fig. 9. — Variations de Δ, Δ′ pour $\nu_1 = 4$ et $\chi_1 = 0 - 0,5 - 1 - 2 - 4$. (Δ′ en traits discontinus).

soit une avance, si N′ est du côté convexe de la spirale logarithmique, soit un retard, si N′ est du côté concave, avec un maximum qui n'est pas toujours nettement marqué (Par exemple pour $\varkappa_1 = 4$, $\nu_1 = 4$, Δ' est positif et pour $\varkappa_1 = 2$, $\nu_1 = 4$, Δ' est négatif).

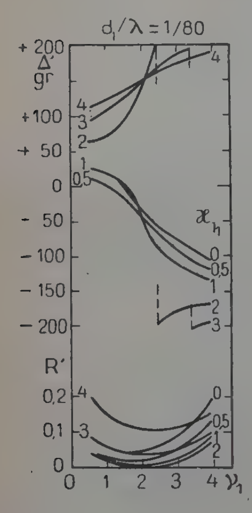


Fig. 10. — Variations de Δ' et R′ en fonction de ν_1 pour $\varkappa_1 = 0 - 0{,}5 - 1 - 2 - 3 - 4$.

Lorsque N′ est très près de la spirale logarithmique on obtient, pour les faibles épaisseurs, une variation extrêmement rapide du changement de phase, le saut de phase étant alors voisin de 2π. Ceci correspond évidemment aux valeurs de $\varkappa_1$ et ν_1 donnant un minimum presque nul du facteur de réflexion dans le verre. On voit donc que, lorsque pour une faible variation des constantes optiques N′ traverse la spirale logarithmique, le changement de phase passe du retard à l'avance avec un saut de phase de 2π. Ce phénomène a été observé et interprété pour la première fois par P. Rouard (12). Il est nettement mis en évidence en traçant, pour une épaisseur donnée, assez faible, les variations de Δ' en fonction de ν_1 pour différentes valeurs de $\varkappa_1$. Par exemple, pour $\frac{d_1}{\lambda} = \frac{1}{80}$, on observe un saut de phase de 2π pour $\varkappa_1 = 2$, $\nu_1 = 2{,}4$ et pour $\varkappa_1 = 3$, $\nu_1 = 3{,}2$ (fig. 10). On remarque aussi que cette épaisseur correspond à un facteur de réflexion nul pour $\varkappa_1 = 2$ et pour $\nu_1 = 2{,}4$. L'existence de ce saut de phase de 2π a permis à P. Rouard (9) d'expliquer les résultats apparemment contradictoires d'un certain nombre d'auteurs.

§ 3. **Facteur de transmission.** — Lorsque le coefficient d'absorption k_1 est très petit (nécessairement inférieur à 1), la courbe donnant les variations du facteur de transmission avec l'épaisseur de la lame présente des ondulations, comme les courbes donnant les facteurs de réflexion (par exemple pour $\nu_1 = 4$, $\varkappa_1 = 0{,}50$). Ces ondulations ont effectivement été observées pour les dépôts d'oxydes métalliques par un certain nombre d'auteurs et en particulier par M. Perrot (13), pour l'oxyde de chrome et par P. Cotton (14) pour le silicium.

A mesure que le coefficient d'absorption k_1 augmente, les ondulations disparaissent. Il faut bien remarquer que la décroissance du facteur de transmission quand l'épaisseur de la lame croît ne suit pas

une loi exponentielle ; cependant cette loi est pratiquement vérifiée pour les lames suffisamment épaisses ayant des facteurs de transmission faibles. Par suite, sauf dans le cas des lames épaisses, on ne peut pas utiliser les mesures de transparence pour déterminer l'épaisseur des lames absorbantes les plus minces (ce que l'on fait quelquefois) surtout quand l'indice d'extinction est petit.

§ 4. **Changement de phase par transmission.** — L'analyse des variations du changement de phase par transmission est plus simple que

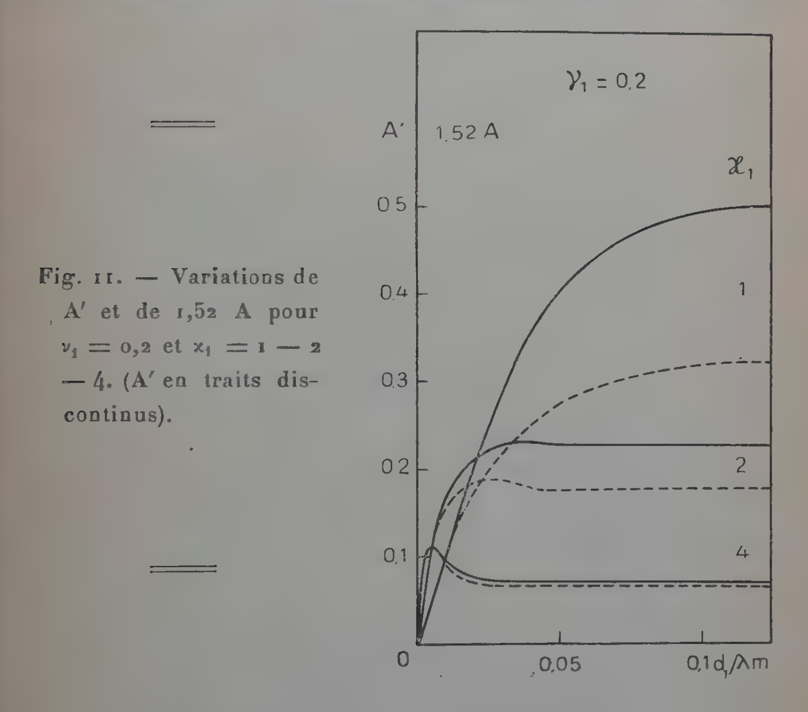


Fig. 11. — Variations de A′ et de 1,52 A pour $\nu_1 = 0{,}2$ et $\chi_1 = 1 - 2 - 4$. (A′ en traits discontinus).

l'analyse des changements de phase par réflexion. Les courbes correspondantes n'ont pas été tracées.

La connaissance du déphasage par transmission est nécessaire dans la méthode du contraste de phase. Ce qui nous intéresse c'est le déphasage relatif φ_t, différence de phase entre la partie de l'onde qui traverse la lame et la partie de l'onde qui passe en dehors de la lame.

Pour des lames épaisses, lorsque le facteur de transmission décroît exponentiellement, le déphasage par transmission est une fonction linéaire de l'épaisseur.

Si $\nu_1 < n_0$, on a une avance de phase quelle que soit l'épaisseur ; si

$\nu_1 > n_0$ on a une avance de phase pour les faibles épaisseurs, puis un retard pour les épaisseurs suffisamment grandes.

§ 5. **Facteurs d'absorption.** — On désigne par $A = 1 - R - T$ le facteur d'absorption de la lame lorsque la lumière vient du côté air et par $A' = 1 - R' - T$ le facteur d'absorption lorsque la lumière vient du côté verre.

Les figures 11 et 12 donnent, pour différentes valeurs des constantes

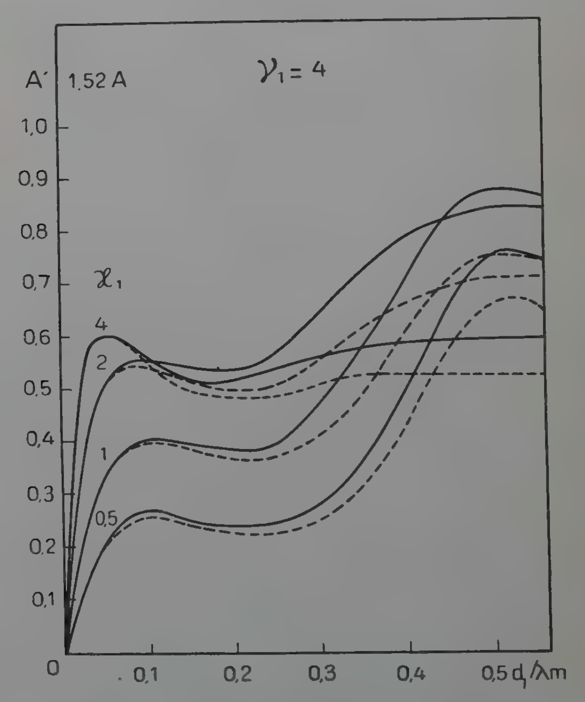


Fig. 12. — Variations de A′ et de 1,52 A
pour $\nu_1 = 4$ et $\chi_1 = 0{,}5 - 1 - 2 - 4$. (A′ en traits discontinus).

optiques, les variations, avec l'épaisseur de la lame, du facteur d'absorption A′ et du produit n_2A pour $n_2 = 1{,}52$ et $n_0 = 1$.

Lorsque le coefficient d'absorption $k_1 = \frac{\chi_1}{\nu_1}$ est petit, les courbes donnant les variations des facteurs d'absorption présentent une succession de maxima et de minima. Deux maxima et deux minima successifs correspondent à des épaisseurs différant entre elles de $\frac{\lambda_m}{2}$.

Pour les faibles épaisseurs on observe un premier maximum relatif de valeur moins grande.

Lorsque k_1 est grand les ondulations disparaissent.

Nous constatons que l'identité de Wolter $A' = 1,52$ A est toujours vérifiée pour les faibles épaisseurs. Elle est pratiquement vérifiée quelle que soit l'épaisseur lorsque le coefficient d'absorption k_1 est très grand.

CHAPITRE V

EXPLICATION THÉORIQUE DES VARIATIONS DES CONSTANTES OPTIQUES AVEC L'ÉPAISSEUR DE LA LAME

Toutes les propriétés optiques des lames minces absorbantes et en particulier le saut de phase de 2π peuvent donc s'expliquer à partir de la théorie électromagnétique de la lumière *si l'on suppose que les constantes optiques varient avec l'épaisseur de la lame.*

On a souvent expliqué ces variations des constantes optiques en supposant une altération de la substance. Il paraît plus simple et plus naturel de faire intervenir la *structure lacunaire* de ces lames minces. On a constaté, en effet, au moyen du microscope électronique que les lames métalliques très minces sont constituées par des microcristallites séparés les uns des autres (15). Par diffraction électronique on a constaté de plus que le réseau cristallin des suspensions métalliques colloïdales est le même que celui du métal compact (16). On en déduit généralement l'égalité des constantes optiques des microcristallites et du métal massif ; mais ce fait n'est pas certain car, les dimensions des cristallites étant du même ordre de grandeur que le libre parcours des électrons de conduction dans le métal, la conductibilité et l'absorption doivent être plus faibles.

L'onde électromagnétique incidente polarise les microcristallites. Les microcristallites polarisés produisent un champ supplémentaire $\overrightarrow{E'}$ qui se compose avec le champ de l'onde incidente $\overrightarrow{E}$. Pour pouvoir calculer ce champ supplémentaire $\overrightarrow{E'}$, J. C. Maxwell-Garnett (17) suppose que les microcristallites sont sphériques et sont distribués suivant les trois dimensions. Il suppose de plus que si l'on trace autour d'un microcristallite une sphère de rayon assez grand par rapport à la distance moyenne des microcristallites, mais petit par rapport aux dimensions du milieu, les actions des microcristallites contenus dans cette sphère sur le microcristallite situé en son centre admettent une résultante nulle. Dans ces conditions le calcul du champ

supplémentaire donne : $\vec{E'} = \frac{4\pi}{3}\vec{I}$, $\vec{I}$ étant le moment électrique de l'unité de volume du milieu. Chaque microcristallite subit en son centre l'influence d'un champ intérieur :

$$\vec{F} = \vec{E} + \vec{E'} = \vec{E} + \frac{4\pi}{3}\vec{I}.$$

C'est sous l'influence de ce champ que les charges électriques des atomes (électrons liés, électrons libres) vont se mouvoir et communiquer au milieu un moment électrique $\vec{I}$ proportionnel à l'intensité du champ $\vec{F}$ et au nombre N de microcristallites dans l'unité de volume :

$$\vec{I} = kN\vec{F}.$$

Nous avons d'autre part :

$$\vec{E} + 4\pi\vec{I} = \varepsilon\vec{E}$$

d'où :

$$\vec{I} = \frac{\varepsilon - 1}{4\pi}\vec{E} \quad \text{et} \quad \vec{F} = \frac{\varepsilon + 2}{3}\vec{E}.$$

En remplaçant $\vec{I}$ et $\vec{F}$ par ces valeurs dans l'expression de $\vec{I}$ en fonction de $\vec{F}$ on trouve la formule de Clausius-Mosotti

$$\frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 2} = \frac{4\pi}{3}kN$$

qui exprime que la quantité $\frac{\varepsilon - 1}{\varepsilon + 2}$ est proportionnelle à la densité D du milieu.

En utilisant la relation $\varepsilon = n^2$ donnée par la théorie électromagnétique de la lumière, on obtient la relation de Lorentz-Lorenz

$$\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2}\frac{1}{D} = C, \qquad \text{C étant une constante.}$$

En représentant par $n = \nu - j\varkappa$ l'indice du corps compact, par $n_1 = \nu_1 - j\varkappa_1$ l'indice de la lame, par q le taux de remplissage (volume réel occupé par le métal dans l'unité de volume du dépôt) la relation ci-dessus permet d'écrire :

$$\frac{n_1^2 - 1}{n_1^2 + 2} = q\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2}$$

d'où :

$$n_1^2 = \frac{1 + 2rq}{1 - rq} \qquad \text{avec} \qquad r = \frac{n^2 - 1}{n^2 + 2}.$$

Pour déterminer rapidement les variations des constantes optiques avec l'épaisseur de la lame, nous avons utilisé un procédé graphique (18).

Calculons d'abord r :

$$r = \frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} = \rho e^{j\chi}.$$

Posons ensuite :

$$n_1 = \sqrt[2]{-2\frac{q + \frac{1}{2r}}{q - \frac{1}{r}}} = \mathrm{N}e^{j\theta}.$$

Portons dans le plan de la variable complexe, les points $\mathrm{N}\left(-\frac{1}{2r}\right)$, $\mathrm{D}\left(\frac{1}{r}\right)$, et $\mathrm{Q}(q)$, on obtient (fig. 13).

$$\mathrm{N} = \sqrt[2]{2\frac{\overline{\mathrm{QN}}}{\overline{\mathrm{QD}}}} \qquad \text{et} \qquad \theta = \frac{\widehat{\mathrm{QD.\,QN}} + \pi}{2}$$

d'où :

$$\nu_1 = \mathrm{N}\cos\theta \qquad \text{et} \qquad \varkappa_1 = \mathrm{N}\sin\theta.$$

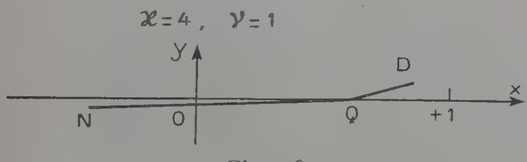


Fig. 13.

Quand q tend vers o, ν_1 tend vers 1 et $\varkappa_1$ vers o. Lorsque $0 < \frac{\cos\alpha}{\rho} < 1$, condition qui ne peut être satisfaite que si $\varkappa > \nu$, on a un maximum pour ν_1 et pour $\varkappa_1$. Le maximum de ν_1 correspond toujours à une valeur de q inférieure à celle qui donne le maximum de $\varkappa_1$. Les courbes de la figure 14 montrent, par exemple, les résultats obtenus pour $\varkappa = 4$ et pour $\nu = 0, 1, 2, 4$.

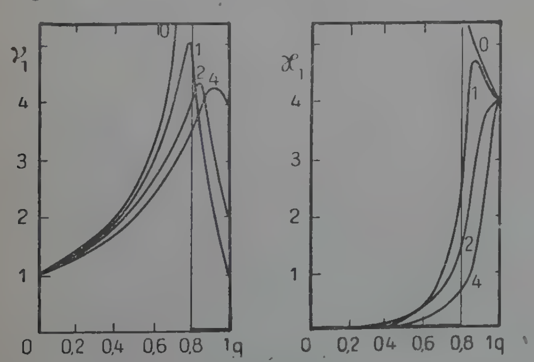


Fig. 14. — Variations de ν_1 et $\varkappa_1$ en fonction de q pour $\varkappa = 4$ et $\nu = 0 - 1 - 2 - 4$.

Les hypothèses faites pour le calcul du champ $\vec{E'}$ dû à la polarisation du milieu (forme sphérique des microcristallites, distribution suivant les trois dimensions) ne sont probablement jamais vérifiées, surtout dans le cas des lames très minces. Les courbes tracées ont donc surtout une valeur qualitative.

Dans le cas des lames minces l'intensité du champ $\vec{E'}$ depend de la direction du champ $\vec{E}$: d'où l'anisotropie des lames.

DEUXIÈME PARTIE

MÉTHODES ET APPAREILS UTILISÉS

CHAPITRE VI

APPAREIL DE VAPORISATION THERMIQUE

Les dépôts sont obtenus par évaporation thermique sur l'une des faces d'une lame prismatique de verre de forme carrée de 45 mm de côté, d'angle 3° et ayant 1 mm d'épaisseur du côté de l'arête.

L'appareil de vaporisation dans le vide (fig. 15) utilise un groupe de pompage constitué par une pompe préliminaire à palettes à un étage et par une pompe à diffusion à vapeur d'huile à trois étages, avec canalisations et vannes métalliques. Ce groupe de pompage fait le vide dans une cloche en verre de 30 cm de diamètre et de 30 cm de hauteur, qui repose sur une platine en acier par l'intermédiaire d'un joint de caoutchouc synthétique de 3 mm d'épaisseur. L'aspiration se fait par une ouverture de 12 cm de diamètre ce qui permet d'obtenir rapidement le vide nécessaire (pression de l'ordre de 10^{-5} mm de mercure).

Le corps à vaporiser est placé dans un creuset formé par un ruban de tantale ou de molybdène de 0,1 mm d'épaisseur plié en forme de gouttière. Ce creuset est chauffé par le passage d'un courant électrique fourni par un transformateur abaisseur de tension (primaire 110 volts, secondaire 5 volts, 100 ampères) ; l'intensité du courant est réglé par un auto-transformateur alimentant le primaire du transformateur abaisseur de tension.

La face à recouvrir de la lame prismatique de verre se trouve placée à 20 cm au-dessus du creuset. On obtient ainsi, à grande distance, une projection d'épaisseur uniforme.

Un disque de 16 cm de diamètre, genre disque de Talbot (fig. 15)

tournant sous le prisme à moins de 1 mm de sa face inférieure permet d'obtenir simultanément sur cette dernière 5 couches de 8 mm de largeur avec des masses de dépôt par cm^2 variant en progression arithmétique. On recouvre en même temps une lamelle couvre-objet de microscope et, par pesées à la microbalance, avant et après la projection, on obtient la masse du dépôt et par suite sa masse maximum par cm^2.

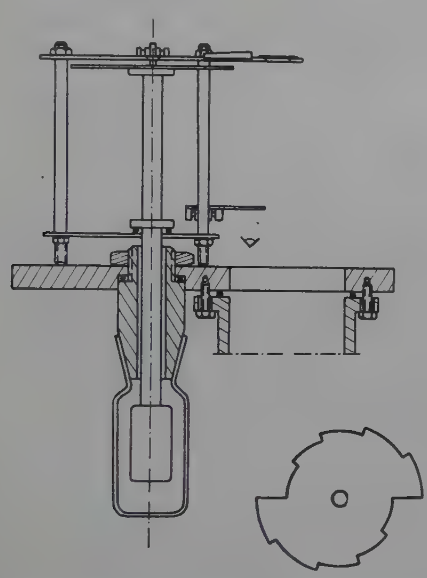


Fig. 15. — Appareil de vaporisation : platine et disque de Talbot.

Le disque de Talbot est entraîné par un moteur asynchrone monophasé à champ tournant, à pôles auxiliaires, avec démarrage par capacité. L'induit en cage d'écureuil, de 39 mm de diamètre, tourne dans le vide sous la platine dans un tube en verre. L'inducteur est dans l'air. Le réglage de la vitesse se fait au moyen d'un auto-transformateur.

Une électrode en aluminium en forme de couronne, placée à 4 cm sous la lame prismatique et portée à une tension redressée de 2 500 volts, sert au nettoyage ionique du support prismatique par l'effluve, dans le vide primaire.

Un écran escamotable permet de masquer la lame pendant le dégazage du creuset avant la projection.

Grâce à cette façon de procéder on obtient sur la même lame prismatique cinq couches minces d'épaisseurs différentes ayant toutes été préparées strictement dans les mêmes conditions ce qui est essentiel pour avoir des résultats cohérents.

CHAPITRE VII

SPECTROPHOTOMÈTRE PHOTOÉLECTRIQUE

Pour la mesure des facteurs de réflexion et du facteur de transmission des lames des corps déposés on utilise un spectrophotomètre photoélectrique. Cet appareil est essentiellement constitué par un monochromateur à prisme, une cellule photoélectrique à vide et un amplificateur à courant continu. L'intensité du courant fourni par ce dernier est mesurée au moyen d'un galvanomètre.

1) *Montage optique* (fig. 16). — La source lumineuse S est une lampe à ruban de tungstène (10 volts-15 ampères) alimentée à inten-

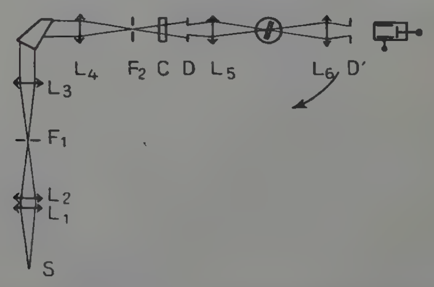


Fig. 16. — Montage optique. Distances focales des lentilles : L_1, L_2, $L_5 = 20$ cm ; L_3, L_4, $L_6 = 30$ cm.

sité constante par une batterie d'accumulateurs (40 volts-400 ampères-heure) avec dans le circuit trois lampes régulatrices fer-hydrogène (15-45 volts-5 ampères) en parallèle.

On projette l'image du ruban de tungstène de la lampe sur la fente d'entrée F_1 d'un monochromateur à prisme, à l'aide d'un condenseur formé de deux lentilles achromatiques L_1 et L_2. A la sortie du monochromateur le faisceau est concentré sur la lame étudiée par la lentille L_5, puis vient éclairer un verre dépoli placé dans le plan focal de la lentille L_6 devant la cellule photoélectrique. Un diaphragme rectangulaire D (6 mm × 12 mm) placé dans le plan focal de la lentille L_5 délimite le faisceau et on amène l'image rectangulaire de ce diaphragme sur un diaphragme circulaire D′ (diamètre 20 mm) placé contre le verre dépoli.

La lame prismatique de verre supportant le dépôt à étudier est

placée, son arête étant verticale, sur une plate-forme à vis calantes, mobile autour d'un axe vertical. La lentille L_4, le verre dépoli et la cellule photoélectrique sont portés par un bras, de 80 cm de longueur, mobile autour du même axe que la plate-forme. On peut ainsi étudier la lame pour une incidence quelconque aussi bien par réflexion que par transmission.

La répartition de la lumière dans le faisceau pouvant être irrégulière, et la sensibilité de la cellule étant localement variable, il est nécessaire, pour la mesure correcte des facteurs de réflexion, d'éclairer la cellule par de la lumière diffusée car, lorsqu'on opère par réflexion le faisceau tourne de 180° par rapport à l'axe de la cellule.

Par autocollimation on place très exactement le diaphragme D' supportant le verre dépoli dans le plan focal de la lentille L_6. Ainsi, l'étendue du faisceau tombant sur le verre dépoli ne varie pas quand on interpose la lame prismatique sur son trajet aussi bien quand on opère par transmission que par réflexion, sans qu'il soit nécessaire de placer exactement la face de la lame prismatique portant le dépôt sur l'axe de rotation de la plate-forme, ni de former exactement l'image de la fente F_2 sur cette face.

La cellule photoélectrique est une cellule à vide au cæsium. Ce type de cellule ayant un maximum de sensibilité marqué dans le rouge vers 8 000 Å on arrête la lumière rouge qui pourrait être diffusée au moyen d'un filtre constitué par une cuve C contenant une solution aqueuse de sulfate de cuivre.

2) *Amplificateur.* — Le courant photoélectrique très faible fourni par la cellule fait varier le potentiel de la grille de commande d'une lampe électromètre double bigrille E_2 Mazda, montée en pont (fig. 17).

Les deux éléments bigrilles n'étant pas absolument identiques il reste un équilibrage à faire. Autour du point de fonctionnement de chaque section de la lampe, on peut remplacer la portion de caractéristique de plaque (intensité du courant-plaque i en fonction du potentiel de plaque v) par la tangente à la courbe en ce point. Nous écrivons l'équation de cette dernière sous la forme :

$$i = \frac{v - e}{\rho}$$

où e représente l'abscisse à laquelle la tangente coupe l'axe des v et ρ représente la résistance intérieure de la lampe au point de fonctionnement. Les équations d'équilibre du pont s'écrivent :

$$e_1 + \rho_1 . i_1 = e_2 + \rho_2 . i_2$$

$$R_1 . i_1 = R_2 . i_2.$$

Pour que cet équilibre soit indépendant des valeurs des intensités des courants i_1 et i_2, c'est-à-dire indépendant des variations des tensions des sources d'alimentation, il faut remplir deux conditions :

$$e_1 = e_2$$

et :

$$\frac{\rho_1}{\rho_2} = \frac{R_1}{R_2}.$$

On prend $R_1 = R_2$, on doit avoir alors $\rho_1 = \rho_2$.

Pour réaliser cette condition : $\rho_1 = \rho_2$ on place en série dans le cir-

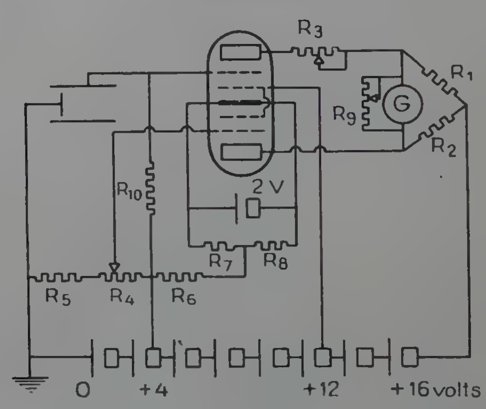


Fig. 17. — Schéma de montage de l'amplificateur.

$R_1 = R_2 = 10\,000\ \Omega$, $R_3 = 10\,000\ \Omega$ réglable, $R_4 = 20\,000\ \Omega$ potentiomètre, $R_5 = 50\,000\ \Omega$, $R_6 = 4\,000\ \Omega$, $R_7 = R_8 = 200\ \Omega$, $R_9 = 2\,000\ \Omega$ potentiomètre, $R_{10} = 2 \times 10^9\ \Omega$.

G : galvanomètre sensibilité $3,5 \times 10^{-9}$ A/mm à 1 m, période 3 s, résistance intérieure 80 Ω, résistance critique 1 000 Ω.

cuit-plaque de la partie de la lampe ayant la plus faible résistance intérieure une résistance réglable R_3. Pour faire le réglage on met en série avec la source donnant la tension plaque le secondaire d'un transformateur fournissant une tension alternative sinusoïdale de quelques volts, puis on introduit sur la diagonale de mesure du pont, à la place du galvanomètre, l'amplificateur alternatif d'un oscilloscope cathodique et on règle le spot à l'amplitude minimum en agissant sur R_3.

Pour réaliser la condition : $e_1 = e_2$, on met le galvanomètre en place et on annule le courant qui le traverse en agissant sur le potentiomètre R_4, dont le curseur est relié à une des grilles de commande convenablement choisies.

Pour augmenter la stabilité du montage on utilise la polarisation automatique de la cathode par la résistance R_6. Le courant de polari-

sation est la somme des courants-plaques et du courant de la grille accélératrice. Une variation de ce courant de polarisation résultant d'une variation des tensions d'alimentation de la lampe modifie la tension de polarisation de façon qu'elle tende à atténuer le déséquilibre du pont produit par la variation des tensions d'alimentation.

La lampe électromètre, supportant la résistance R_{10}, est placée sous double blindage. La résistance R_{10} est constituée par un dépôt d'argent sur un tube de verre et elle est placée dans le vide. La cellule photoélectrique est également placée sous double blindage. La liaison avec la lampe électromètre se fait par un long cable blindé isolé au polythène. Toutes les résistances sont des résistances bobinées. Elles sont rassemblées dans une boîte métallique. Les liaisons avec la lampe électromètre, les batteries d'accumulateurs et le galvanomètre se font par des câbles blindés ordinaires.

On emploie pour le chauffage un élément d'accumulateur au plomb de forte capacité (100 ampères-heure). Les autres tensions sont données par une batterie d'accumulateurs au plomb de faible capacité (2 ampères-heure).

Les connexions sont soudées, principalement les connexions du circuit de chauffage du filament de la lampe électromètre.

La lecture des déviations du galvanomètre se fait sur une échelle de 1 m de longueur placée à 5 m du galvanomètre. Les déviations sont proportionnelles aux flux lumineux à 1 ou 2 millièmes près. Les erreurs de mesure des rapports des flux transmis ou réfléchis par la lame étudiée au flux incident sont de l'ordre de quelques unités de la troisième décimale.

CHAPITRE VIII

DÉTERMINATION DES FACTEURS DE RÉFLEXION ET DU FACTEUR DE TRANSMISSION D'UNE LAME

Les corps étudiés sont déposés sur l'une des faces d'une lame prismatique de verre. Cette forme prismatique du support de la lame mince du corps à étudier permet de séparer les faisceaux utiles des faisceaux provenant des réflexions sur l'autre face du support.

En utilisant le spectrophotomètre photoélectrique précédemment décrit, on mesure, en valeurs relatives, le flux incident Φ_I, le flux transmis Φ_T, le flux réfléchi sur la lame mince dans l'air Φ_R et le flux réfléchi sur la lame mince dans le verre $\Phi_{R'}$ (fig. 18*a* et *b*). De ces résultats de mesure des flux on déduit le facteur de transmission T et les facteurs de réflexion R, R' de la lame du corps étudié. On a en effet les relations :

Pour le flux transmis :

$$\Phi_T = T(1 - R_v)(1 - A_v)\Phi_I$$

d'où :

$$T = \frac{\Phi_R}{\Phi_I} \cdot \frac{1}{(1 - R_v)(1 - A_v)}$$

(en appelant R_v le facteur de réflexion du verre nu et A_v le facteur d'absorption du support en verre de la lame mince).

Pour le flux réfléchi dans l'air :

$$\Phi_R = R\Phi_I \qquad \text{d'où :} \qquad R = \frac{\Phi_R}{\Phi_I}.$$

Pour le flux réfléchi dans le verre :

$$\Phi_{R'} = R'(1 - R_v)^2(1 - A_v)^2\Phi_I$$

d'où :

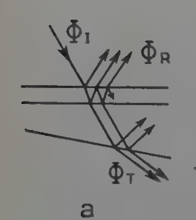
$$R' = \frac{\Phi_{R'}}{\Phi_I} \cdot \frac{1}{(1 - R_v)^2(1 - A_v)^2}.$$

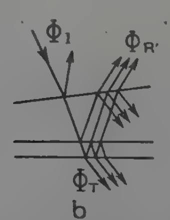
Pour calculer la quantité $(1 - R_v).(1 - A_v)$ on opère sur le support prismatique nu (fig. 18*c*). On mesure en valeurs relatives, les flux réfléchis sur les deux faces Φ_{R_1} et Φ_{R_2}. On a les relations :

$$\Phi_{R1} = R_v\Phi_I$$
$$\Phi_{R2} = R_v(1 - R_v)^2(1 - A_v)^2\Phi_I$$

d'où :

$$(1 - R_v)^2(1 - A_v)^2 = \frac{\Phi_{R1}}{\Phi_{R2}}.$$





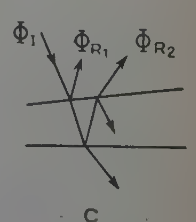


Fig. 18 a-b-c. — Mesure des facteurs de réflexion et du facteur de transmission.

Le facteur de réflexion dans l'air est déterminé avec une erreur qui ne dépasse pas 5 unités de la troisième décimale. Le facteur de réflexion dans le verre et le facteur de transmission, à cause des corrections à faire, sont déterminés avec une erreur qui peut être plus forte, mais qui ne dépasse pas cependant une unité de la seconde décimale, même pour les fortes valeurs de ces facteurs.

TROISIÈME PARTIE

RÉSULTATS

CHAPITRE IX

ARGENT CATHODIQUE

H. Murmann a déterminé, au moyen d'une méthode graphique [19], les constantes optiques de lames minces d'argent préparées par F. Goos et dont ce dernier auteur avait mesuré les facteurs de réflexion et de transmission (10). Ces lames minces d'argent étaient déposées par pulvérisation cathodique sur un prisme de très petit angle (2 à 3°) en silice amorphe. Les facteurs de réflexion dans l'air R et dans le support R′ ainsi que le facteur de transmission T étaient mesurés en incidence normale.

Pour déterminer les constantes optiques de ces lames, Murmann admettait comme épaisseurs celles que Goos avait obtenues par pesées en supposant que la densité du dépôt était égale à celle du métal massif. Cette façon de procéder conduit, comme je le montrerai plus loin, à des erreurs importantes à la fois sur l'épaisseur et sur les constantes optiques.

De plus, la méthode de Murmann donne deux couples de valeurs pour les indices, l'un correspondant à un coefficient d'absorption $k_1 = \frac{\varkappa_1}{\nu_1}$ plus petit que 1 et l'autre à $k_1 > 1$. Pour l'argent et les radiations du spectre visible Murmann et ensuite K. Krautkrämer [20] ont choisi $k_1 > 1$. Pour les lames les plus minces c'est à mon avis la mauvaise solution. En effet, pour les radiations visibles, les courbes expérimentales donnant, en fonction de l'épaisseur, la variation du facteur de transmission passent par un maximum très marqué pour les faibles épaisseurs et par suite, nécessairement, k_1 est alors < 1. Ceci est d'ailleurs conforme à ce que j'ai prévu théoriquement au chapitre V : quand l'épaisseur diminue, ν_1 et $\varkappa_1$ passent par un maximum, puis ν_1 tend vers 1 et $\varkappa_1$ tend vers 0.

Toutes les déterminations des constantes optiques des lames minces d'argent faites jusqu'à présent sont à mon avis erronées, pour les raisons que je viens d'exposer. J'ai donc repris les valeurs de R, R′ et T obtenues expérimentalement par Goos et j'ai refait les calculs par ma nouvelle méthode de détermination *simultanée* des constantes optiques et de l'épaisseur pour les radiations de longueur d'onde 2 653 Å et 3 020 Å. (Pour l'argent et les radiations du spectre visible une

mesure de changement de phase est indispensable pour déterminer simultanément les constantes optiques et l'épaisseur, comme je l'ai exposé au chapitre II).

D'autre part, j'ai, au moyen de la relation de Wolter, vérifié à partir de quelle épaisseur limite on avait le droit d'appliquer cette nouvelle méthode en utilisant uniquement les valeurs de R, R′ et T.

Les tableaux I et II résument l'ensemble des résultats obtenus par Goos, par Murmann et par moi-même pour les radiations de longueur d'onde 2 653 Å et 3 020 Å. Dans ces tableaux on trouvera :

— dans la colonne 1, les épaisseurs *d* obtenues par pesée ;

— dans les colonnes 2, 3 et 4 les valeurs de R, R′ et T déterminées par Goos ;

— dans les colonnes 5, 6 et 7 les valeurs des facteurs d'absorption A, A′ et de l'expression $n_2 . A - A'$ que j'ai calculées à partir des résultats expérimentaux de Goos ;

— dans les colonnes 8, 9 et 10 les valeurs des constantes optiques ν_1 et $\varkappa_1$ et de l'épaisseur vraie d_1 que j'ai obtenues *simultanément* à partir des mesures de Goos, au moyen de ma nouvelle méthode ;

— dans la colonne 11 les valeurs du taux de remplissage *q* obtenues par comparaison de l'épaisseur déduite de la pesée et de l'épaisseur vraie ;

— enfin dans les deux dernières colonnes les anciennes valeurs des constantes optiques calculées par Murmann. On notera que ces dernières présentent des différences notables avec celles que j'ai obtenues.

Tableau I

Argent cathodique : $\lambda = 2\,653$ Å, $n_2 = 1,50$.

d mμ	T	R	R′	A	A′	$n_2 . A - A'$	ν_1	$\varkappa_1$	d_1 mμ	*q*	Murmann ν_1	Murmann $\varkappa_1$
0,81	0,888	0,057	0,026	0,055	0,086	0,003	—	—	—	—		
1,53	0,834	0,065	0,018	0,101	0,148	0,003	—	—	—	—		
2,51	0,770	0,081	0,005	0,149	0,225	0,001	—	—	—	—		
3,60	0,716	0,095	0,005	0,189	0,279	0,005	—	—	—	—		
8,4	0,523	0,150	0,010	0,327	0,467	0,023	1,2	0,9	16,6	0,50	1,8	0,9
12,0	0,435	0,192	0,038	0,373	0,527	0,033	1,35	1,15	17,2	0,70	1,7	1,1
17,5	0,320	0,234	0,079	0,446	0,601	0,068	1,45	1,2	22,9	0,76	1,6	1,2
21,9	0,256	0,264	0,125	0,480	0,619	0,101	1,3	1,25	25,5	0,86	1,7	1,0
29,4	0,172	0,286	0,176	0,542	0,652	0,160	1,2	1,25	34,5	0,85	1,5	1,3
45,6	0,065	0,256	0,198	0,679	0,737	0,265	1,1	1,2	60,3	0,76		
69,6	0,012	0,228	0,178	0,760	0,810	0,330	1,1	1,2	90,0	0,78		
110,3	0	0,205	0,169	0,795	0,831	0,360	1,05	1,05	—	—		

Tableau II

Argent cathodique : $\lambda = 3\,020$ Å, $n_2 = 1{,}49$.

d mμ	T	R	R′	A	A′	$n_2 \cdot$A —A′	ν_1	$\varkappa_1$	d_1 mμ	q	Murmann	
											ν_1	$\varkappa_1$
0,81	0,920	0,045	0,028	0,035	0,052	0	—	—	—	—		
1,53	0,888	0,053	0,023	0,059	0,089	0,009	—	—	—	—		
2,51	0,856	0,058	0,018	0,086	0,126	0,002	—	—	—	—		
3,60	0,821	0,065	0,013	0,114	0,166	0.004	—	—	—	—		
8,4	0.687	0,098	0,002	0,215	0,311	0,009	—	—	—	—		
12,0	0,612	0,118	0,045	0,270	0,384	0,018	1.3	0,6	20,3	0,60	1,4	0,9
17,5	0,505	0,150	0,019	0,345	0,476	0,038	1,3	0,8	22,3	0,78	1,5	1,0
21,9	0,436	0,169	0,039	0,395	0,525	0,064	1,2	0,85	26,1	0,84	1,7	1,1
29.4	0.345	0,187	0,073	0,468	0,582	0,117	1,2	0,8	35,3	0,83	1,5	1,0
45,6	0,200	0,169	0,107	0,631	0,693	0,247	1,2	0,8	52,1	0,87		
69,6	0,084	0,123	0,081	0,793	0,835	0,346	1,35	0 75	86,6	0,80		
110,3	0,021	0,121	0,067	0 858	0,912	0,368	1,4	0,75	148	0,75		

Pour les faibles épaisseurs, pour lesquelles $n_2 . \mathrm{A} - \mathrm{A}' < 0{,}01$ il n'est pas possible de déterminer *simultanément* les constantes optiques et l'épaisseur vraie en utilisant uniquement les valeurs de R, R′ et T comme je l'ai montré au chapitre II.

Les erreurs dans la détermination des constantes optiques et du taux de remplissage étant de l'ordre de 10 o/o, on constate par l'examen de ces tableaux que :

1° Les valeurs du taux de remplissage sont les mêmes, quelles que soient les longueurs d'onde. Ceci justifie les hypothèses servant de base à la théorie des lames minces : lame homogène limitée par deux surfaces planes et parallèles. La vérification pour les lames très minces de la relation de Wolter $n_2 . \mathrm{A} = \mathrm{A}'$ est aussi une bonne vérification de l'homogénéité des lames.

2° Pour les lames d'épaisseur supérieure à 20 mμ les valeurs obtenues pour les constantes optiques et pour le taux de remplissage restent pratiquement invariables.

Pour les lames d'épaisseur supérieure à 20 mμ on peut prendre $q = 0{,}80$ ou $q = 0{,}85$. La densité du dépôt est donc inférieure à la densité du métal massif ; par suite, les valeurs des constantes optiques données par Murmann sont, à mon avis, erronées et on voit sur les tableaux que les erreurs sont importantes. Pour illustrer ceci,

nous donnons (fig. 19) pour la radiation de longueur d'onde 2 653 Å les courbes représentant ν_1 et $\varkappa_1$ en fonction de d.

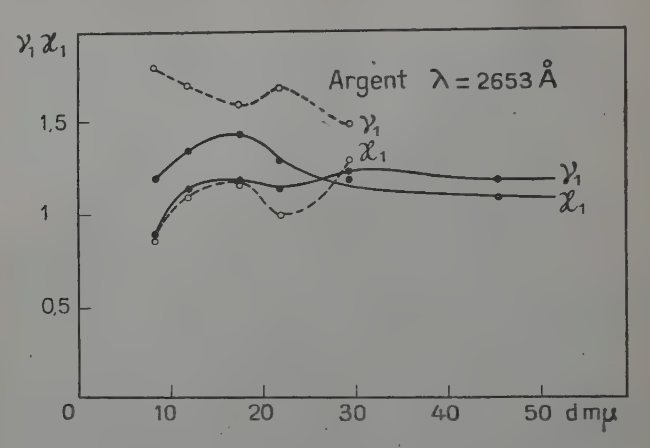


Fig. 19. — Variations de ν_1 et $\varkappa_1$ en fonction de d.
En traits discontinus les résultats de Murmann.

Pour les lames d'argent obtenues par pulvérisation cathodique d'épaisseur supérieure à 20 mμ, les nouvelles valeurs des constantes optiques, sont les suivantes :

λ	2 653 Å	3 020 Å
ν_1	1,1	1,3
$\varkappa_1$	1,2	0,7

Ces constantes optiques sont différentes des constantes optiques de l'argent massif qui, d'après Goos, sont les suivantes :

λ	2 653 Å	3 020 Å
ν	1,51	1,54
ϰ	1,29	0,78

CHAPITRE X

OR CATHODIQUE

Les constantes optiques des lames minces d'or préparées par pulvérisation cathodique ont été déterminées précédemment par F. Goos [21]. La lame d'or étudiée étant déposée sur une lame prismatique de silice amorphe, cet auteur mesurait, en incidence normale, ses facteurs de réflexion dans l'air R et dans le support R′, ainsi que son facteur de transmission T. L'épaisseur *d* était déterminée par la pesée du dépôt en supposant que la densité était égale à celle de l'or massif. L'indice de réfraction ν_1 et l'indice d'extinction $\varkappa_1$ étaient déduits ensuite des mesures de *d*, R, R′ et T par la méthode de Murmann. Cette façon de procéder a conduit Goos, comme je le montre plus loin, à des erreurs importantes sur les valeurs des constantes optiques. J'ai donc repris les valeurs de R, R′ et T obtenues par Goos et j'ai refait les calculs de ν_1, $\varkappa_1$ et d_1 par la méthode de détermination *simultanée* des constantes optiques et de l'épaisseur exposée au chapitre II. D'autre part, j'ai, au moyen de la relation de Wolter, vérifié à partir de quelle épaisseur limite on avait le droit d'appliquer cette méthode en utilisant uniquement les valeurs R, R′ et T.

Les tableaux III, IV, V et VI résument l'ensemble des résultats obtenus par Goos et par moi-même pour les radiations de longueurs

TABLEAU III

Or cathodique : $\lambda = 2\,653$ Å, $n_2 = 1,50$.

d mμ	T	R	R′	A	A′	$n_2.A - A'$	ν_1	$\varkappa_1$	d_1 mμ	*q*	Goos	
											ν_1	$\varkappa_1$
1,04	0,859	0,060	0,018	0,081	0,123	0,002	—	—	—	—	1,6	1,8
3,60	0,653	0,105	0	0,242	0,347	0,016	—	—	—	—	1,9	1,6
4,55	0,584	0,129	0	0,287	0,416	0,014	—	—	—	—	2,0	1,6
7,04	0,487	0,179	0,025	0,334	0,488	0,014	1,5	1,4	9,5	0,74	1,7	1,8
10,6	0,369	0,235	0,066	0,396	0,565	0,029	1,5	1,4	14,4	0,74	1,9	1,6
15,9	0,249	0,309	0,150	0,442	0,601	0,062	1,3	1,55	20,4	0,78	1,9	1,6
21,2	0,173	0,351	0,206	0,476	0,621	0,093	1,2	1,6	24,6	0,86	1,6	1,7
26,5	0,112	0,370	0,260	0,513	0,628	0,142	1,1	1,55	33,1	0,80	1,4	1,8
42,4	0,026	0,367	0,290	0,607	0,684	0,226	1,1	1,5	54,3	0,78	1,5	1,8
53,0	0,016	0,347	0,278	0,637	0,706	0,249	1,0	1,4	59,7	0,88	1,4	1,7

Tableau IV

Or cathodique : $\lambda = 3\,130$ Å, $n_2 = 1{,}48$.

d mμ	T	R	R′	A	A′	n_2.A − A′	ν_1	$\varkappa_1$	d_1 mμ	q	Goos ν_1	Goos $\varkappa_1$
1,04	0,870	0,053	0,020	0,077	0,110	0,004	—	—	—	—	1,5	2,0
3,60	0,679	0,090	0,002	0,231	0,319	0,023	—	—	—	—	1,8	1,75
4,55	0,630	0,119	0,003	0,251	0,368	0,003	—	—	—	—	2,0	1,6
7,04	0,495	0,170	0,010	0,335	0,485	0,011	1,6	1,3	11,1	0,64	2,0	1,7
11,0	0,368	0,230	0.063	0,402	0,569	0,034	1,5	1,3	18.0	0,61	2,0	1,7
12,5	0,318	0,253	0,083	0,429	0,599	0,036	1,6	1,3	19,	0,64	1,9	1,8
18,8	0,210	0,331	0,111	0,457	0 619	0,061	1,3	1,65	27,8	0,76	1,9	1,8
31,3	0,08[illegible]	0,3[illegible]3	0,276	0,527	0,64[illegible]	0,132	1,3	1.7	39,2	0,80	1,9	1,9
43,8	0,029	0,378	0,281	0,593	0,690	0,188	1,3	1 7	55	0,80	2,1	1,9
50,1	0,017	0,357	0,271	0,626	0,712	0,214	1,2	1,6	68,5	0,73	2,1	1,9

Tableau V

Or cathodique : $\lambda = 4\,359$ Å, $n_2 = 1{,}47$.

d mμ	T	R	R′	A	A′	n_2.A —A′	ν_1	$\varkappa_1$	d_1 mμ	q	Goos ν_1	Goos $\varkappa_1$
1,04	0,887	0,048	0,022	0,065	0,091	0,004	—	—	—	—	2,0	1,7
3,60	0,728	0,084	0,002	0,188	0,270	0,006	—	—	—	—	2,0	1,7
4,55	0,685	0,098	0,002	0,217	0,313	0,006	—	—	—	—	2,0	1,7
7,04	0,571	0,135	0,007	0,294	0,422	0,010	—	—	—	—	2,1	1,7
15,2	0,368	0,234	0,074	0,398	0,558	0,028	1,3	1,3	27,2	0,86	2,0	1,7
26,1	0,205	0,341	0,185	0.454	0,610	0,057	1,3	1,6	36,5	0,72	1,8	1,9
34,8	0,130	0,386	0,245	0,484	0,625	0.087	1,3	1,7	44	0,79	1,8	1,9
43,5	0,082	0,395	0,281	0,523	0,637	0,132	1,2	1,7	58,2	0,77	1,9	1,9
52,2	0,050	0,38[illegible]	0,291	0,561	0,659	0,165	1,2	1,7	65,9	0,79	1,9	1,9

d'onde respectives 2 653 Å, 3 130 Å, 4 359 Å et 5 461 Å. Dans ces tableaux, on trouvera :

— dans la colonne 1 les épaisseurs d déterminées par pesée ;

— dans les colonnes 2, 3 et 4 les valeurs de R, R′ et T obtenues expérimentalement par Goos ;

— dans les colonnes 5, 6 et 7 les valeurs des facteurs d'absorption A et A′ ainsi que les valeurs de l'expression n_2.A — A′ que j'ai calculées à partir des résultats expérimentaux de Goos ;

— dans les colonnes 8, 9 et 10 les valeurs des constantes optiques ν_1 et $\varkappa_1$ et de l'épaisseur vraie d_1 que j'ai obtenues *simultanément* à partir des mesures de Goos au moyen de la nouvelle méthode que j'ai proposée ;

— dans la colonne 11 les valeurs du taux de remplissage q tirées de la comparaison de l'épaisseur obtenue par pesée et de l'épaisseur vraie ;

— enfin dans les deux dernières colonnes les anciennes valeurs des constantes optiques déterminées par Goos.

TABLEAU VI

Or cathodique : $\lambda = 5\,461$ Å, $n_2 = 1{,}47$.

d mμ	T	R	R′	A	A′	n_2.A —A′	ν_1	$\varkappa_1$	d_1 mμ	q	Goos	
											ν_1	$\varkappa_1$
1,04	0,862	0,053	0,017	0,085	0,121	0,004	—	—	—	—	3,3	1,8
3,60	0,676	0,099	0,004	0,225	0,320	0,011	—	—	—	—	2,2	2,5
4,55	0,648	0,115	0,010	0,237	0,342	0,006	—	—	—	—	1,9	2,7
7,04	0,581	0,158	0,044	0,260	0,374	0,009	—	—	—	—	1,4	2,85
10,9	0,528	0,210	0,098	0,262	0,374	0,003	—	—	—	—	1,0	2,7
21,8	0,417	0,380	0,300	0,203	0,283	0,016	0,40	2,0	29,8	0,73	0,50	2,6
43,7	0,123	0,671	0,615	0,206	0,262	0,041	0,30	2,0	50,1	0,87	0,44	2,6
54,6	0,070	0,718	0,672	0,212	0,258	0,054	0,30	2,0	70,6	0,77	0,43	2,6

Pour les faibles épaisseurs, telles que $n_2 . A - A' < 0{,}01$ il n'est pas possible de déterminer *simultanément* les constantes optiques et l'épaisseur vraie en utilisant uniquement les mesures de R, R′ et T. Il faut utiliser une mesure de changement de phase, comme je l'ai montré au chapitre II. Je n'ai donc pas pu calculer les valeurs correspondantes des constantes optiques et de l'épaisseur vraie. Les valeurs des constantes optiques données par Goos appellent les plus sérieuses réserves.

Les erreurs dans la détermination des constantes optiques et du taux de remplissage étant de l'ordre de 10 o/o, on constate par l'examen de ces tableaux que :

1° Les valeurs du taux de remplissage que j'ai obtenues sont les mêmes quelles que soient les longueurs d'onde. Ceci est un argument en faveur de l'homogénéité des lames. La vérification de la relation de Wolter pour les lames très minces est aussi une bonne vérification de cette homogénéité.

2° Pour les lames d'épaisseur supérieure à 20 mμ les valeurs obtenues pour les constantes optiques et pour le taux de remplissage restent invariables quand l'épaisseur croît.

Pour les lames d'épaisseur supérieure à 20 mμ, on peut prendre $q = 0{,}80$ ou $q = 0{,}85$. La densité du dépôt est donc inférieure à la densité de l'or massif. Les constantes optiques déterminées par Goos sont par suite, à mon avis, erronées et on voit sur les tableaux que les erreurs sont importantes. Pour illustrer ceci, nous donnons (fig. 20) pour la radiation de longueur d'onde 2 653 Å les courbes représentant ν_1 et $\varkappa_1$ en fonction de *d*.

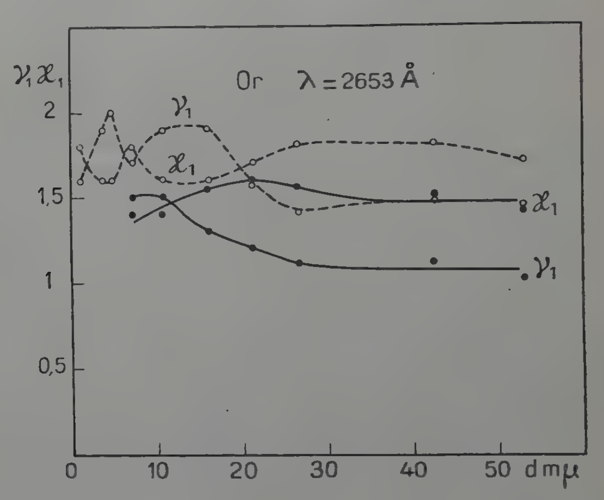


Fig. 20. — Variations de ν_1 et $\varkappa_1$ en fonction de *d*.
En traits discontinus les résultats de Goos.

On voit que les courbes représentant les résultats de Goos sont moins régulières que celles que j'ai obtenues. Ces dernières présentent chacune un maximum. Ce maximum se produit pour une épaisseur plus faible pour ν_1 que pour $\varkappa_1$, ce qui est en accord avec les résultats théoriques signalés au chapitre V.

Pour les lames d'épaisseur supérieure à 20 mμ, les valeurs des nouvelles constantes optiques pour les couches minces d'or obtenues par pulvérisation cathodique, sont les suivantes :

λ	2 653 Å	3 130 Å	4 359 Å	5 461 Å
ν_1	1,1	1,3	1,3	0,3
$\varkappa_1$	1,5	1,7	1,7	2

Ces constantes optiques ne sont pas égales aux constantes optiques de l'or massif qui, d'après Goos, sont les suivantes :

λ	2 653 Å	3 130 Å	4 359 Å	5 461 Å
ν	1,3	2,1	1,8	0,44
$\varkappa$	1,6	1,9	1,9	2,6

CHAPITRE XI

OR THERMIQUE

Les lames minces d'or préparées par évaporation thermique ont déjà été étudiées par K. Krautkrämer (20). Malheureusement les lames obtenues par cet auteur ne paraissent pas homogènes. En effet, la relation de Wolter n'est pas vérifiée pour les lames les plus minces, quelle que soit la radiation utilisée. Il m'a paru donc inutile d'essayer de déterminer les constantes optiques et l'épaisseur vraie des lames minces d'or en utilisant les résultats des mesures de Krautkrämer.

Tout récemment H. Schopper (22) a étudié, pour la radiation de longueur d'onde 5 461 Å, des lames d'or d'épaisseur inférieure à 20 mμ. Les valeurs des facteurs d'absorption que j'ai calculées en utilisant les résultats de mesure de R, R′ et T faites par Schopper, vérifient toutes la relation de Wolter, ce qui prouve que par évaporation thermique on peut obtenir des lames homogènes. Schopper a déterminé les constantes optiques et l'épaisseur vraie de ces lames d'or très minces en utilisant les résultats de mesure de R, R′ et T et des changements de phase correspondants.

Pour étudier les lames d'épaisseur supérieure à 20 mμ, j'ai préparé des lames d'or par évaporation thermique suivant le procédé indiqué précédemment au chapitre VI. Ce procédé permet d'obtenir simultanément cinq lames d'épaisseurs différentes préparées rigoureusement dans les mêmes conditions. Les résultats obtenus sont ainsi comparables entre eux.

Les tableaux VII et VIII donnent les résultats obtenus pour les radiations de longueurs d'onde 4 359 Å et 5 461 Å. On trouvera :

— dans la colonne 1 les épaisseurs *d* déduites de la pesée du dépôt ;

— dans les colonnes 2, 3 et 4 les valeurs de R, R′ et T que j'ai mesurées ;

— dans les colonnes 5, 6 et 7 les valeurs des facteurs d'absorption A, A′ et de l'expression n_2 A — A′ que j'ai calculées ;

— dans les colonnes 8, 9 et 10 les valeurs des contantes optiques ν_1, $\varkappa_1$ et de l'épaisseur vraie d_1 que j'ai obtenues *simultanément* au moyen de ma nouvelle méthode ;

— enfin, dans la colonne 11 les valeurs du taux de remplissage *q* tirées de la comparaison de l'épaisseur obtenue par pesée et de l'épaisseur vraie.

Tableau VII

Or thermique : $\lambda = 4359$ Å, $n_2 = 1{,}52$.

d mμ	T	R	R′	A	A′	n_2.A — A′	ν_1	$\varkappa_1$	d_1 mμ	*q*
1,9	0,814	0,079	0,016	0,107	0,170	0,007	—	—	—	—
3,8	0,692	0,104	0,002	0,204	0,306	0,004	—	—	—	—
5,7	0,654	0,124	0,002	0,222	0,344	0,007	—	—	—	—
7,6	0,564	0,152	0,009	0,284	0,427	0,005	—	—	—	—
9,6	0,518	0,172	0,016	0,310	0,466	0,005	—	—	—	—
17,1	0,[illegible]20	0,274	0,118	0,406	0,558	0,058	1,2	1,6	26,4	0,73
34,2	0,130	0,396	0,268	0,474	0,602	0,119	1,1	1,7	47,8	0,83
51,3	0,048	0,422	0,312	0,508	0,617	0,156	1,3	1,8	60,4	0,85
68,4	0,020	0,418	0,306	0.562	0,674	0,179	1,6	2,0	70	0,98
85,6	0,012	0,392	0,284	0,598	0,704	0,206	1,6	[illegible],95	87	0.97

Tableau VIII

Or thermique : $\lambda = 5461$ Å, $n_2 = 1{,}52$.

d mμ	T	R	R′	A	A′	n_2.A — A′	ν_1	$\varkappa_1$	d_1 mμ	*q*
1,9	0,767	0,078	0,007	0,155	0,226	0,010	—	—	—	—
3,8	0,641	0,125	0,005	0,234	0,354	0,002	—	—	—	—
5,7	0,600	0,142	0,011	0,258	0,389	0,003	—	—	—	—
7,6	0,578	0,166	0,036	0,256	0,386	0,003	—	—	—	—
9,6	0,556	0,182	0,060	0,262	0,384	0,014	—	—	—	—
17,1	0,448	0,324	0,226	0,227	0,326	0,019	0,50	2,0	21,7	0,79
34,2	0,186	0,600	0,524	0,214	0,290	0,035	0,4	2,3	42,4	0,82
51,3	0,067	0,728	0,664	0,205	0,269	0,043	0,4	2,4	62,5	0,82
68,4	0,026	0,774	0,738	0,200	0,236	0,068	0,35	2,3	76	0,90
85,6	0,012	0,792	0,756	0,196	0,232	0,066	0,35	2,3	94	0,91

Aux erreurs de mesures près le taux de remplissage est le même pour les deux radiations utilisées. Ceci est une bonne vérification de l'homogénéité des lames. De plus nous avons vérifié que la relation de Wolter est satisfaite pour les lames très minces préparées dans les mêmes conditions.

Pour les lames d'épaisseur supérieure à 20 mμ le taux de remplissage est de l'ordre de 0,90 et les constantes optiques sont les suivantes :

λ	4 359 Å	5 461 Å
ν_1	1,4	0,4
$\varkappa$	1,8	2,3

Schopper donne pour $\lambda = 5\,461$ Å et $d = 22{,}9$ mμ, $\nu_1 = 0{,}5$, $\varkappa_1 = 2{,}4$, $q = 0{,}85$. Cet accord entre nos résultats a déjà été signalé par Schopper (22) ; il peut être considéré comme très satisfaisant, car les propriétés optiques des lames dépendent des conditions de projection (degré de vide et vitesse de projection), comme l'ont montré R. S. Sennett et G. D. Scott (15). On remarquera cependant que les constantes optiques et le taux de remplissage des lames assez épaisses d'or préparées par évaporation thermique sont à peu près les mêmes que ceux obtenus pour les lames préparées par pulvérisation cathodique, ce qui semble indiquer que les structures des deux sortes de lames sont sensiblement les mêmes.

Ici encore les constantes optiques obtenues pour les lames épaisses sont différentes de celles du métal massif.

RÉSUMÉ

Après avoir rappelé les formules donnant les valeurs des facteurs de réflexion et de transmission en fonction des constantes optiques et de l'épaisseur d'une lame mince homogène absorbante déposée sur un support transparent, j'ai exposé une nouvelle méthode permettant la détermination *simultanée* des constantes optiques et de l'épaisseur de la lame en utilisant les mesures, en incidence normale, des facteurs de réflexion, du facteur de transmission et, dans certains cas, d'un des changements de phase correspondants. La mesure d'un

changement de phase est obligatoire dans le cas des lames très minces et dans les cas où le coefficient d'absorption est très grand.

Pour appliquer cette nouvelle méthode, il est nécessaire de tracer au préalable une série de courbes donnant, en fonction de l'épaisseur de la lame, pour différentes valeurs des constantes optiques, les variations des facteurs de réflexion, du facteur de transmission et des changements de phase en incidence normale. Ce travail préliminaire est simplifié par l'emploi d'une méthode de calcul graphique que j'ai mise au point et qui permet en particulier la détermination rapide des coefficients de Fresnel en incidence normale au moyen d'un abaque.

Les réseaux de courbes ainsi obtenues permettent d'étudier toutes les propriétés optiques des lames minces absorbantes déposées sur un support transparent. J'ai exposé les résultats de cette étude et j'ai montré que toutes les propriétés optiques des lames minces absorbantes peuvent s'expliquer à partir de la théorie électromagnétique de la lumière si l'on suppose que les constantes optiques varient avec l'épaisseur de la lame. J'ai expliqué théoriquement les variations des constantes optiques en faisant intervenir la structure lacunaire des lames.

Ma nouvelle méthode de détermination *simultanée* des constantes optiques et de l'épaisseur a été appliquée d'abord à des résultats de mesures antérieures faites par F. Goos sur des lames minces d'argent et d'or préparées par pulvérisation cathodique. J'ai mis en évidence des différences importantes entre les nouvelles valeurs des constantes optiques que j'ai calculées et les anciennes valeurs obtenues par la méthode de H. Murmann. La nouvelle méthode permettant la détermination de l'épaisseur *vraie* des lames, j'ai montré que la densité du dépôt n'est pas égale à la densité du métal massif. Ce résultat explique les erreurs commises dans les déterminations des constantes optiques faites au moyen de la méthode de H. Murmann.

J'ai montré, ensuite, que les constantes optiques de lames assez épaisses d'or, préparées par évaporation thermique, sont à peu près les mêmes que celles obtenues pour les lames préparées par pulvérisation cathodique, ce qui semble indiquer que les structures des deux sortes de lames sont sensiblement les mêmes. J'ai montré également que les constantes optiques obtenues pour les lames épaisses sont différentes de celles du métal massif, ce qui rend discutables les déterminations des constantes optiques du métal massif faites au moyen de couches épaisses obtenues par pulvérisation cathodique ou par évaporation thermique.

Pour préparer les lames d'or, j'ai monté un appareil de vaporisation permettant d'obtenir *simultanement* cinq lames minces d'épaisseur différentes préparées strictement dans les mêmes conditions ce qui est essentiel pour avoir des résultats cohérents. Pour mesurer ensuit

les facteurs de réflexion et de transmission des lames ainsi obtenues j'ai construit un spectrophotomètre photoélectrique constitué par un monochromateur, une cellule photoélectrique à vide et un amplificateur à courant continu soigneusement stabilisé. Cet amplificateur est constitué par une lampe électromètre double montée en pont avec une résistance de polarisation automatique servant de contre-réaction.

(Travail effectué au Laboratoire de Physique générale de la Faculté des Sciences de Marseille).

BIBLIOGRAPHIE

1. H. MURMANN. — *Zeits. für Physik*, 1933, **80**, 161.
2. H. WOLTER. — *Zeits. für Physik*, 1937, **105**, 269.
3. K. FÖRSTERLING. — *Ann. der Physik*, 1937, **30**, 745.
4. D. MALÉ. — *Comptes rendus de l'Académie des Sciences*, 1950, **230**, 1349 ; *Comptes rendus de l'Académie des Sciences*, 1952, **235**, 1630.
5. H. SCHOPPER. — *Zeits. für Physik*, 1952, **131**, 215.
6. D. MALÉ. — *Journal de Physique*, 1945, **6**, 40 S ; *Journal de Physique* 1950, **11**, 332.
7. P. COTTON. — *Journal de Physique*, 1945, **6**, 40 S ; *Annales de Physique*, 1947, **2**, 209.
8. F. KAEMPF. — *Ann. der Physik*, 1905, **16**, 308.
9. P. ROUARD. — *Annales de Physique*, 1937, **7**, 291.
10. F. GOOS. — *Zeits. für Physik*, 1936, **100**, 95.
11. P. ROUARD et M. PERROT. — *Cahiers de Physique*, 1943, **17**, 63.
12. P. ROUARD. — *Cahiers de Physique*, 1941, **1**, 25.
13. M. PERROT. — *Annales de Physique*, 1944, **19**, 150.
14. P. COTTON. — *Journal de Physique*, 1950, **11**, 375.
15. R. S. SENNETT et G. D. SCOTT. — *J. opt. Soc. Am.*, 1950, **40**, 203.
16. P. SCHERRER. — *Nach. Gott.*, 1918, 98.
17. J. C. MAXWELL-GARNETT. — *Phi. Trans.*, 1904, A. **203**, 385.
18. D. MALÉ. — *Comptes rendus de l'Académie des Sciences*, 1950, **230**, 286.
19. H. MURMANN. — *Zeits. für Physik*, 1936, **101**, 643.
20. K. KRAUTKRÄMER. — *Ann. der Physik*, 1938, **32**, 537.
21. F. GOOS. — *Zeits. für Physik*, 1937, **106**, 606.
22. H. SCHOPPER. — *Zeits. für Physik*, 1951, **130**, 565.

CONTRIBUTION A L'ÉTUDE DE L'EFFET PHOTOMAGNÉTO-ÉLECTRIQUE SUR LE GERMANIUM (1)

Par Hubert BULLIARD

INTRODUCTION

Le travail qui va suivre a été suscité par la mise en évidence sur le germanium de l'effet photomagnéto-électrique découvert sur la cuprite par Kikoin et Noskov en 1933 au Physico-Technical Institute de Urals, Léningrad.

L'effet est le suivant : si une lame de semi-conducteur illuminée par de la lumière qui tombe perpendiculairement sur une face est placée dans un champ magnétique parallèle au plan de la lame, il

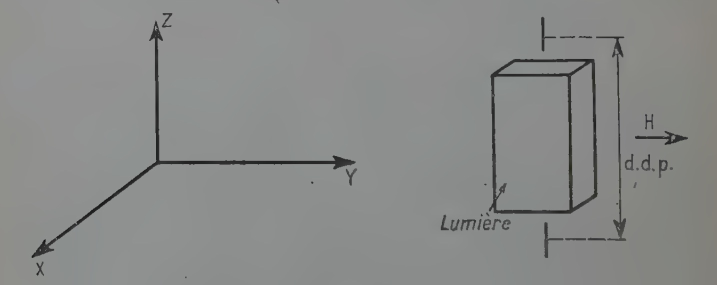


Fig. 1.

apparaît dans une direction perpendiculaire au champ magnétique, une différence de potentiel. Autrement dit, si la lumière est dirigée suivant l'axe des x, le champ suivant l'axe des y, la tension apparaît suivant l'axe des z.

Dans le cas de la cuprite, objet des travaux de Kikoin et Noskov, ces derniers opéraient à la température de l'air liquide, le spécimen étant éclairé par de la lumière blanche. Ils obtinrent des différences de potentiel pouvant atteindre 20 volts dans certains cas et des

(1) Thèse présentée le 20 mai 1953 à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques.

champs de l'ordre de 5 volts/cm. Ils notèrent que l'effet diminuait rapidement avec la température, et était réduit à la température ordinaire au delà de la limite de sensibilité de leurs appareils de mesure. L'effet apparaissait avec de la lumière bleue, mais disparaissait lorsqu'on éclairait le spécimen avec de la lumière rouge. Quand ils superposaient de la lumière rouge à la lumière bleue, l'effet était réduit.

Une théorie de cet effet fut donnée par Frenkel en 1934, qui considérait l'effet comme étant un effet de Hall dû à la différence de potentiel de Dember (cette dernière apparaissait entre la face sombre et la face éclairée).

Nous avons entrepris d'étudier l'effet photomagnéto-électrique sur le germanium et d'en donner une explication théorique qui tient compte des connaissances acquises depuis sur les phénomènes se passant à l'intérieur des semi-conducteurs, et des principaux résultats expérimentaux relatifs au germanium. Nous rappellerons au début quelques résultats connus, relatifs aux semi-conducteurs et en particulier aux propriétés du germanium.

GÉNÉRALITÉS

Le germanium est un métalloïde de la quatrième colonne, homologue du carbone et du silicium. C'est un semi-conducteur intrinsèque et d'impuretés. Théoriquement, au zéro absolu, un cristal parfait de germanium est isolant, les porteurs présents à la température ordinaire, proviennent soit de la bande de valence, soit des impuretés chimiques présentes, soit des défauts de réseau.

Pour faire passer un électron de la bande de valence à la bande de conduction, il faut une énergie de 0,75 électron-volt d'après les mesures thermiques; les mesures optiques donnent 0,72 ev. Pour faire passer un électron dans la bande de conduction à partir d'une impureté, il suffit d'une énergie de 0,001 ev, ce qui explique qu'à la température ordinaire tous les porteurs sont ionisés, l'énergie thermique d'un électron étant, à la température ordinaire, de 0,026 ev. Il n'est d'ailleurs pas nécessaire pour cela que l'énergie d'ionisation E_i soit inférieure à l'énergie thermique; en effet, le nombre d'impuretés ionisées est de la forme :

$$\frac{p_1}{p_2} e^{-\frac{E_i}{kT}},$$

où p_1 est le nombre de places libres dans la bande de conduction et p_2 le nombre d'impuretés susceptibles d'être ionisées ; en général dans un bon germanium on a $p_2 \ll p_1$.

Lorsque le nombre de porteurs libérés par les impuretés est nettement inférieur au nombre de ceux provenant de la bande de valence, le semi-conducteur est dit intrinsèque.

La théorie moderne des solides permet d'étudier le comportement des trous et des électrons dans un semi-conducteur sous l'action des champs. On trouve que les résultats classiques sont applicables à condition d'affecter l'électron et le trou d'une masse différente de leur masse réelle. Cette masse différente, appelée masse effective, est due au fait que l'électron et le trou se déplacent dans un potentiel périodique. Dans le cas d'un cristal imparfait il faut tenir compte aussi des vibrations thermiques (phonons) qui ont pour effet de défléchir l'électron et, lorsqu'il est sous l'influence d'un champ, de le ramener à l'état thermique, c'est-à-dire dans l'état qu'il occuperait en l'absence de champ, ceci n'étant vrai qu'en première approximation. Ces vibrations sont d'ailleurs à l'origine de l'énergie thermique de l'électron. Dans le cas du germanium le libre parcours moyen entre deux telles collisions est de l'ordre de 10^{-5} cm., c'est-à-dire 1 000 distances interatomiques. On a donc la représentation schématique ci dessus du comportement d'un électron en absence de champ.

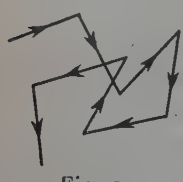


Fig. 2.

Lorsqu'un grand nombre d'électrons est présent dans un faible volume et que la concentration ailleurs est moins grande, les électrons ont tendance à diffuser dans tout le volume. Dans le cas où il existe un gradient de concentration, on trouve que le nombre d'électrons qui traversent par seconde l'unité de surface, est égal au produit du gradient de concentration par une constante D appelée coefficient de diffusion, qui a les dimensions de cm²/sec.

Action d'un champ électrique. — Lorsqu'on applique un champ électrique, l'électron ou le trou, au lieu de se déplacer au hasard, se meut dans la direction du champ. Pour tenir compte des vibrations thermiques, on suppose que le porteur se comporte comme une particule classique pendant un libre parcours moyen, et qu'après, il est restitué dans un état thermique quelconque. On a donc les schémas suivants :

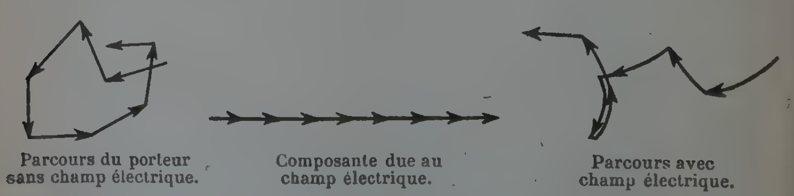


Fig. 3.

On obtient la relation suivante entre la vitesse de déplacement v_d et le champ électrique $\vec{E}$:

$$\vec{v_d} = \pm \frac{e\theta}{m} \vec{E} = \mu \vec{E}$$

$-e$ = charge de l'électron.
θ = temps séparant deux collisions.
m = masse effective du porteur.

La quantité μ est appelée mobilité du porteur en question. Cette mobilité prend dans le germanium la valeur :

3 600 cm²/volt/sec. pour les électrons.
1 700 cm²/volt/sec. pour les trous.

Il est facile de voir qu'il existe une relation simple entre la constante de diffusion et la mobilité. Cette dernière :

$$D/\mu = kT/e = 0{,}026 \text{ volts à } 300^\circ \text{ K},$$

est connue sous le nom de relation d'Einstein.

Durée de vie et recombinaison. — Lorsque l'on crée artificiellement des paires électron-trou dans le germanium par de la lumière de longueur d'onde inférieure à 1,8 μ, ou lorsque l'on injecte des trous par une pointe métallique, comme cela se fait dans le cas de la pointe émettrice d'un transistor, ces porteurs, une fois créés, tendent à diffuser et aussi à se recombiner. Par exemple, lorsque l'on cesse d'illuminer un spécimen de germanium, la décroissance du nombre des paires électron-trou, est de la forme : K exp $(-t/\tau)$, où τ est une constante appelée durée de vie, qui est de l'ordre du temps nécessaire pour que le porteur ait subi 10^6 à 10^8 collisions. Le processus par lequel les électrons et les trous se recombinent est resté longtemps mystérieux ; en effet d'après le principe du « bilan détaillé », principe qui dit que la probabilité d'une transition est la même que celle de la transition inverse, on serait amené à penser qu'ils se recombinent par le processus inverse de leur génération avec émission d'un photon. Or, si on calcule la probabilité pour qu'un électron et un trou se recombinent en utilisant les valeurs expérimentales des coefficients d'absorption, on tombe sur une durée de vie de l'ordre de la seconde. On en déduit que ce n'est pas par ce processus que les électrons et les trous se recombinent. Ceci n'a rien d'étonnant car la transition correspondante (absorption d'un photon avec création d'une paire électron-trou) est fortement interdite par les règles de sélection de la Mécanique Quantique. Elle n'apparaît en absorption qu'à cause de la très forte densité des électrons de valence (de l'ordre de $2 \cdot 10^{23}$ par cm³), alors que pour le processus de recombinaison, il n'y

a seulement que 10^{15} trous libres par centimètre cube pouvant se recombiner. On est donc conduit à envisager un autre processus de probabilité plus grande P, se faisant par l'intermédiaire de pièges. Ce dernier n'apparaîtrait pas en absorption car la densité des pièges est faible (10^{12} par cm^3 environ) et on peut avoir : $P \times 10^{12} \ll p \times 10^{23}$, p étant la probabilité du premier processus quoique $P \times 10^{12} \gg p \times 10^{15}$. Les pièges en question seraient situés à 0,22 env. en dessous de la bande de conduction, d'après des mesures de R. N. Hall (1), du coefficient de recombinaison en volume en fonction de la température. Ils sont probablement dus à des imperfections de réseau (on a pu, en effet, réduire la durée de vie dans le germanium en bombardant le cristal avec des faisceaux électroniques de haute énergie ou avec des particules nucléaires). Nous dirons en passant que cette durée de vie a une grande importance dans le transistor. Ce dernier a des caractéristiques d'autant meilleures que le germanium avec lequel il est fabriqué a une plus grande durée de vie.

Remarquons que ce processus de recombinaison peut aussi se produire en surface, ce qui conduit à l'introduction d'une nouvelle quantité : la vitesse de recombinaison en surface ; cette dernière peut d'ailleurs être nettement réduite par des traitements chimiques appropriés de la surface, comme nous le verrons plus loin.

Action d'un champ magnétique. — On traite ce problème de la même façon que dans le cas d'un champ électrique ; on suppose que l'électron est soumis à l'action du champ pendant le temps qui sépare deux collisions, et qu'ensuite il revient à l'état thermique. L'action du champ magnétique se traduit par la force de Lorentz :

$$\vec{F} = \frac{e}{c} \vec{v} \wedge \vec{H}$$

$\vec{v}$ étant la vitesse moyenne, entre deux collisions, de l'électron.

Effet Hall. — Nous rappellerons l'importance, dans l'étude des semi-conducteurs, de l'effet Hall découvert en 1879, qui permet une détermination directe du type de porteur présent et de sa concentration et qui, si l'on y ajoute des mesures de conductibilité, conduit à la mobilité. Etant donné que le nombre des impuretés présentes dans certains semi-conducteurs est inaccessible à l'analyse chimique, on conçoit l'importance, dans la technologie des semi-conducteurs, de l'effet Hall.

Rappelons brièvement quel est cet effet et son explication.

L'effet Hall apparaît lorsqu'une substance parcourue par un courant est soumise à un champ magnétique perpendiculaire au courant.

(1) *Physical Review*, 1952, **87**, 387.

Si le courant est suivant l'axe des x, le champ magnétique selon l'axe des z, il apparaît un gradient de potentiel suivant l'axe des y. Ce dernier est proportionnel au courant et au champ magnétique :

grad $V_H = - RiH$.
V_H = tension de Hall.
i = courant traversant le spécimen (densité).
H = champ magnétique.
R = constante de Hall.

On l'explique de la façon suivante : en l'absence du champ magnétique, les porteurs circulent le long du spécimen; en présence du champ magnétique ils sont défléchis sous l'action de la force : $\frac{e}{c} \vec{v} \wedge \vec{H}$, force qui n'agit que dans l'intervalle θ de temps entre deux collisions, ce qui donne pour les angles de déviation :

$$\omega_p = \frac{e\theta_p H}{mc} = \frac{\mu_p H}{c} \qquad \omega_n = \frac{e\theta_n H}{mc} = \frac{\mu_n H}{c}.$$

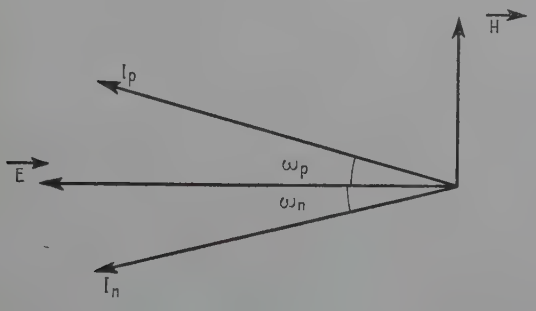


Fig. 4.

En présence de champ magnétique, les porteurs sont donc défléchis et les deux côtés du germanium se chargent différemment en donnant naissance à un champ électrique qui, à l'état d'équilibre, doit juste compenser l'action déflectrice du champ magnétique. Lorsqu'on exprime ces conditions on trouve pour R dans le cas d'un seul type de porteurs :

$$R = \frac{1}{\pm nec}$$

n étant la concentration du porteur en question.

En fait cette formule n'est qu'approchée, un calcul plus rigoureux donne :

$$R_H = \frac{3\pi}{8} \frac{1}{n \pm ec}.$$

Effet Nernst. — Nous dirons un mot de cet effet parce qu'il peut être un effet parasite dans l'étude expérimentale de l'effet photo-magnéto-électrique, quoique nous n'ayons pas eu cette difficulté.

Quand on établit un gradient de température aux extrémités d'une substance et qu'un champ magnétique est appliqué perpendiculairement au gradient de température, une différence de potentiel apparaît dans la troisième direction.

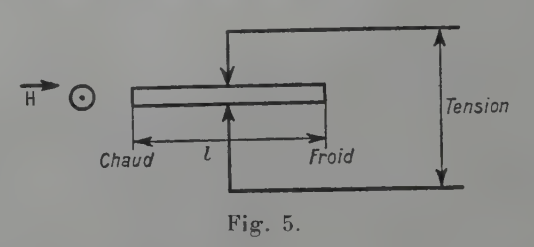


Fig. 5.

La tension est donnée par :

$$V_N = B_N H\left(-\frac{dt}{dl}\right)D,$$

D étant le diamètre du spécimen.

ESSAI D'INTERPRÉTATION THÉORIQUE DE L'EFFET

Notations. — Dans ce qui va suivre nous aurons à employer les notations suivantes :

p = nombre de trous par unité de volume.
n = nombre d'électrons par unité de volume.
$\vec{j}_p$ = densité de courant dû aux trous.
$\vec{j}_n$ = densité de courant dû aux électrons.
N = nombre de porteurs libres dans le spécimen non éclairé par unité de volume.

Positif dans le cas de trous, négatif dans le cas d'électrons.

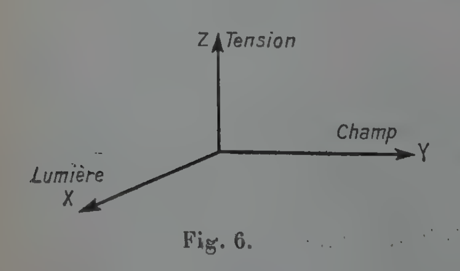


Fig. 6.

Etant donné la symétrie du problème il est évident que toutes ces valeurs, à part N qui, lui, est constant, ne dépendent que de x, et prennent la même valeur quels que soient y et z. Les axes sont ceux définis dans l'introduction.

Généralités. — L'effet photomagnétoélectrique s'interprète théoriquement de la façon suivante : la lumière, tombant sur le spécimen, libère des paires électron-trou dans une région voisine de la surface ; ces derniers diffusent alors vers l'intérieur du germanium en se recombinant ; le champ magnétique a pour effet de défléchir ces porteurs libres, les électrons vers le haut, les trous vers le bas, d'où l'effet photomagnétoélectrique.

Dans une première partie, nous étudierons successivement :

a) l'action de la lumière ;

b) les courants de diffusion et les phénomènes de recombinaison ;

c) l'action du champ magnétique.

Nous poserons ensuite les équations générales relatives aux courants prenant naissance sous l'action de la lumière. Etant donné l'impossibilité de résoudre ces équations, nous indiquerons quelques approximations raisonnables permettant de continuer les calculs.

Dans une seconde partie, nous présenterons la théorie simplifiée de l'effet due aux approximations précédemment exposées.

Tout au long de cette étude une attention toute particulière sera portée au cas du germanium sur lequel ont été faites nos mesures et éventuellement au cas de la cuprite, objet du travail de Kikoin et Noskov.

PREMIÈRE PARTIE

Action de la lumière. — Lorsque de la lumière tombe sur un semi-conducteur, si sa longueur d'onde est inférieure à la longueur d'onde

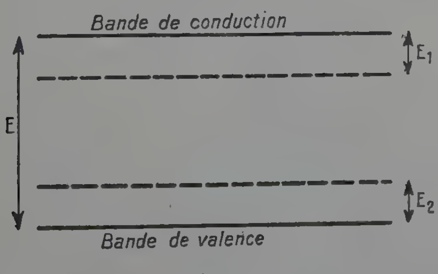


Fig. 7.

définie par la relation : $h\nu_0 = E$, E étant la largeur de la bande interdite ou éventuellement la distance des niveaux d'impuretés à la bande de conduction (E_1) ou à la bande de valence (E_2), elle a pour effet de

créer des paires électron-trou — c'est-à-dire de faire passer un électron de la bande de valence à la bande de conduction — dans le premier cas, ou d'ioniser les impuretés dans les deux derniers cas.

Le fait qu'il y a passage continu de l'absorption à la transmission peut s'expliquer soit en tenant compte des ondes thermiques présentes dans le cristal qui ont pour effet d'élargir et de rétrécir la bande interdite — il peut d'ailleurs y avoir aussi collaboration d'un photon et d'un ou plusieurs phonons ce qui explique la production de paires électron-trou en dessous du seuil — soit en calculant, par les méthodes de la mécanique quantique, la probabilité de transition pour des photons d'énergie voisine de ν_0.

On trouve qu'il y a passage continu suivant une loi plus ou moins compliquée de l'absorption dans une mince couche à la transparence complète.

Rappelons par ailleurs les résultats de Goucher qui indiquent qu'une charge électronique est libérée par photon absorbé, c'est-à-dire de longueur d'onde inférieure à 1,8 μ dans le germanium.

Diffusion et recombinaison. — Les paires électron-trou une fois libérées, peuvent soit se recombiner en surface, soit diffuser vers l'intérieur et s'y recombiner. Le fait qu'un électron ne peut se recombiner qu'avec un trou, entraîne l'égalité du courant dû aux charges

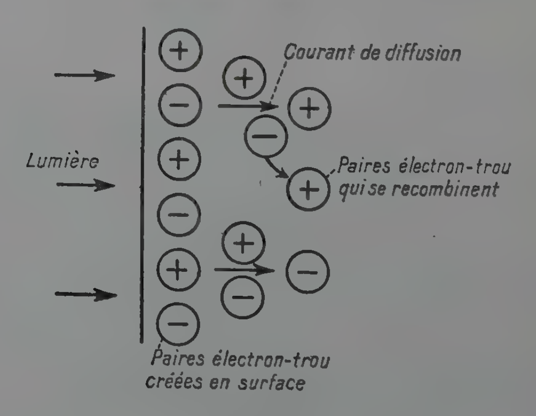


Fig. 8.

positives avec celui dû aux électrons. Il y a donc un flux de porteurs se dirigeant vers l'intérieur du semi-conducteur sous l'action des forces de diffusion. C'est ce fait très important qui est à la base de l'explication de l'effet photomagnétoélectrique.

Action du champ magnétique. — Lorsqu'on fait agir sur ces porteurs un champ magnétique perpendiculaire au plan de la figure, ils sont défléchis, les charges positives vers le bas, les électrons vers le haut; le bas se charge positivement, le haut négativement d'où l'effet photomagnétoélectrique.

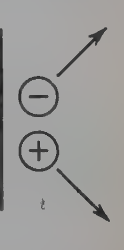


Fig. 9.

Equations générales. — Nous allons d'abord envisager ce qui se passe en l'absence de champ magnétique. Soit μ_n la mobilité des électrons, c'est-à-dire la vitesse moyenne qu'ils acquièrent sous l'action d'un champ électrique unité; soit μ_p la quantité correspondante pour les trous. Etudions par exemple ce qui se passe pour les trous sous l'action des forces de diffusion et en présence d'un champ électrique une fois le régime d'équilibre atteint. C'est bien le cas qui nous concerne : en effet, les seules forces qui peuvent agir sont, d'une part, les forces de diffusion, d'autre part, des forces dues à un champ électrique né d'une répartition inégale des charges, ce champ a d'ailleurs forcément la direction de l'axe des x.

Le courant dû aux trous est alors régi par l'équation :

(1) $$\vec{j}_p = e\mu_p p\vec{E} - eD_p \nabla p,$$

celui dû aux électrons :

$$\vec{j}_n = e\mu_n n\vec{E} + eD_n \nabla n.$$

Ecrivons maintenant l'équation de continuité qui dans le cas d'un régime d'équilibre exprime simplement que le nombre de porteurs présents dans un élément de volume est constant. Cette équation s'écrit pour les trous :

$$\operatorname{div} \vec{j}_p = (g_p - r_p)e.$$

$g_p =$ nombre de trous créés par unité de volume dus à la lumière.
$r_p =$ nombre de trous qui se recombinent par unité de volume.

Etant donné que les trous et les électrons sont créés par paires et se recombinent par paires, on a la même équation pour les électrons que pour les trous.

On posera donc :

$$g_n = g_p = L(x)$$
$$r_n = r_p = r(x)$$

ce qui donne :

(2) $$-\operatorname{div} \vec{j}_n = \operatorname{div} \vec{j}_p = [L(x) - r(x)]e.$$

Pour résoudre ces équations, il faut y joindre une troisième donnant le champ électrique, c'est-à-dire dans ce cas l'équation de Poisson :

$$\text{(3)} \qquad \operatorname{div} \vec{E} = \frac{4\pi}{\varepsilon_0 k}(p - n + N)e.$$

Or, quelle que soit la façon dont on tienne compte de $L(x)$ et de $r(x)$ dans les équations, on est conduit pour les résoudre à tirer $\vec{E}$ de l'équation (3) et à le reporter dans l'équation (1), ce qui conduit à des produits np et p^2, c'est-à-dire à une équation du deuxième ordre non linéaire que nous ne savons pas résoudre de façon rigoureuse.

On est donc amené à certaines simplifications. Nous avons traité le problème dans le cas des mobilités égales. Cette hypothèse, outre l'avantage qu'elle a de simplifier les calculs, semble assez justifiée dans le cas du germanium ; en effet, sans être égales, les mobilités sont dans le rapport deux à un, et si l'on prend une mobilité moyenne, on ne se trompera guère. On verra par ailleurs qu'en prenant comme moyenne la movenne harmonique, on obtient une bonne approximation, tout au moins au premier ordre. Dans ce cas, du fait des mobilités égales, il découle $n = p - N$; on s'aperçoit que toutes les équations sont vérifiées pour $\vec{E} = 0$.

Frenkel, de son côté, avait choisi les hypothèses simplificatrices suivantes :

— semi-conducteur intrinsèque,
— de faible épaisseur,
— pratiquement isolant.

Il trouve pour la tension de Dember, la formule suivante :

$$\varphi = \frac{kT}{e} \frac{\mu_n - \mu_p}{\mu_n + \mu_p} \log \frac{n_0}{n}$$

dans le cas de fortes illuminations, avec :

$$n = p = n_0 \exp(-\alpha x).$$

Ensuite il écrit que la force agissant sur un électron ou un trou est due à l'action combinée du champ électrique de Dember et du champ magnétique, mais sans tenir compte des gradients de diffusion ; une autre difficulté, d'ailleurs, apparaît dans la théorie de Frenkel : la façon dont il tient compte de la recombinaison des paires électron-trou.

Frenkel avait émis l'hypothèse que le nombre de paires électron-trou qui se recombinent, était proportionnel à la densité des porteurs injectés. Lifschitz a, par la suite, critiqué la façon dont Frenkel avait utilisé cette hypothèse. Il se trouve que dans le cas du germanium

cette hypothèse est vérifiée. En effet, d'après ce que nous avons vu dans l'introduction, le processus de recombinaison directe d'un électron avec un trou, ou processus bimoléculaire, ne donne pas des résultats concordant avec l'expérience pour les durées de vie ; d'autre part un tel processus donnerait pour le nombre de porteurs qui se recombinent une loi proportionnelle au carré de la concentration, alors que les résultats expérimentaux de R. N. Hall (1), donnent une loi linéaire. Ce dernier trouve que le nombre de porteurs qui se recombinent est donné par :

$$R = \frac{np - n_i^2}{t_p(n + n_0) + t_n(p + p_0)}$$

où :

n_i = produit des concentrations des électrons et des trous à l'équilibre.

t_n = durée de vie des électrons lorsque les centres de recombinaison sont vides.

t_p = durée de vie des trous quand tous les centres sont occupés par des électrons.

Les centres de recombinaison se trouvent à un niveau d'énergie défini par n_0 et p_0 qui sont les concentrations des trous et des électrons à l'équilibre dans un spécimen où le niveau de Fermi coïncide avec la position des centres de recombinaison.

Parmi les cas simples où l'équation de Poisson est résoluble, outre celui des mobilités égales, il en existe un autre : c'est le cas où une mobilité est nulle ; ceci correspond par exemple à un semi-conducteur d'impuretés où l'action de la lumière a pour effet de faire passer un électron de l'atome d'impureté dans la bande de conduction (semi-conducteur de type n). Dans ce cas les atomes d'impuretés jouent le rôle de trous de mobilité nulle. Pour conserver l'égalité des courants de trous et d'électrons, il apparaît un champ électrique qui compense exactement le courant de diffusion dû aux électrons. Il n'y a pas d'effet photomagnétoélectrique car les deux courants sont nuls séparément. Dans ce cas la théorie de Frenkel donnerait un effet. Par contre, dans le cas des mobilités égales, la théorie de Frenkel entraînerait la suppression de l'effet Dember et par suite de l'effet photomagnétoélectrique ; or il est évident que ce dernier subsiste puisqu'il est lié non à la présence d'un champ électrique mais d'un flux de porteurs libres, dans le semi-conducteur.

Dans le cas où les mobilités sont inégales, on ne peut supposer $n = p - N$; dans ce cas le terme N nous gêne. Supposons que nous ayons affaire à un semi-conducteur dans lequel le nombre de porteurs

(1) *Physical Review*, 1952, **87**, 387.

injectés soit nettement plus grand que N. Si l'on regarde l'équation de Poisson dans ce cas :

$$\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi}{\varepsilon_0 k}(p - n)e.$$

Une faible différence entre p et n donne naissance à des champs électriques intenses. On est donc conduit à poser p peu différent de n et en première approximation $p = n$.

Reprenons les équations de départ :

$$\vec{j}_p = e\mu_p pE - eD_p \nabla p$$
$$\vec{j}_n = e\mu_n nE + eE_n \nabla n$$

qui peuvent se mettre sous la forme :

$$\frac{\vec{j}_p}{kT\nabla p} = \mu_p\left(-1 + \frac{epE}{kT\nabla p}\right)$$

$$\frac{\vec{j}_n}{kT\nabla n} = \mu_n\left(1 + \frac{enE}{kT\nabla n}\right).$$

On a dans ce cas :

$$-\frac{epE}{kT\nabla p} = \frac{enE}{kT\nabla n} = \alpha \qquad \text{c'est-à-dire } p = n$$

c'est le cas d'un spécimen intrinsèque.

Posons dans ce cas :

$$-\mu_p(-1 + \alpha) = \mu_n(1 + \alpha) = \mu_m$$

d'où :

$$\mu_m = \frac{2\mu_n\mu_p}{\mu_n + \mu_p}.$$

On obtiendra donc une meilleure approximation en prenant pour mobilité moyenne la moyenne harmonique des mobilités.

Nous admettrons que la formule précédente dérivée dans le cas d'un spécimen intrinsèque est encore vraie dans le cas général. Remarquons encore que dans le cas où une mobilité est nulle, elle donne encore de bons résultats.

En ce qui concerne la lumière nous ferons la théorie dans le cas d'une lumière monochromatique. On admettra que le nombre des porteurs créés est de la forme $\alpha L \exp.(-\alpha x)$.

α étant le coefficient d'absorption de la lumière,

L étant l'intensité d'éclairement en photons par centimètre carré par seconde.

Les calculs ne sont pas forcément vrais pour une lumière polychromatique sauf si celle-ci est violemment absorbée.

DEUXIÈME PARTIE

THÉORIE SIMPLIFIÉE DE L'EFFET

D'après la discussion générale, nous adopterons donc pour traiter le problème, les trois hypothèses suivantes :

a) les mobilités sont égales ;

b) la recombinaison en volume est de la forme $\frac{p}{\tau}$;

c) le nombre de porteurs créés par la lumière est de la forme : $\alpha L \exp(-\alpha x)$.

Notations.

h = hauteur du spécimen.

l = épaisseur du spécimen.

N = densité de porteurs libres dans le spécimen non éclairé, de l'ordre de 10^{14}.

μ = mobilité des électrons ou des trous ;

D = constante de diffusion reliée à la mobilité par la relation d'Einstein $D = \frac{kT}{e}\mu$.

τ = durée de vie en volume ; dans le germanium τ varie de 1 ms à 1 μs.

β = coefficient de recombinaison en volume défini par $D\beta^2 = \frac{1}{\tau}$; β a les dimensions de l'inverse d'une longueur et varie de 4 à 100 cm^{-1} dans le germanium.

σ = vitesse de recombinaison superficielle, comprise entre 200 et 10^4 cm./sec.

$-e$ = charge de l'électron.

Calcul du courant dû aux trous ou aux électrons en l'absence de champ magnétique. — Les axes sont définis comme dans l'introduction, l'origine de l'axe des x étant prise sur la face éclairée.

Il est évident qu'étant donné la symétrie entre les électrons et les trous, et du fait que nous avons supposé leurs mobilités égales, nous aurons les mêmes équations pour les électrons que pour les trous, en changeant seulement le signe de la charge.

D'après nos hypothèses les trous ne sont soumis qu'aux forces de diffusion, le courant provoqué par ces derniers est donc donné par :

$$(1) \qquad \vec{j}_p = -eD\frac{\partial p}{\partial x}$$

comme nous l'avons vu il faut joindre à cette équation, l'équation de continuité :

$$(2) \qquad \frac{1}{e}\nabla\vec{j}_p = g - r = \alpha L_0 \exp(-\alpha x) - \frac{p}{\tau}.$$

En éliminant $\vec{j}_p$ entre les deux équations et en tenant compte de la relation $D\beta^2 = \frac{1}{\tau}$ il vient :

$$(3) \qquad \frac{\partial^2 p}{\partial x^2} - \beta^2 p = -\alpha\frac{L_0}{D}\exp(-\alpha x).$$

On est en présence d'une équation différentielle linéaire du second ordre à coefficients constants. Les solutions de cette équation sont de la forme :

$$p = P_1 \exp(-\beta x) + P_2 \exp(\beta x) + P_3 \exp(-\alpha x),$$

le dernier terme représentant une intégrale particulière avec :

$$P_3 = \frac{-\alpha L_0}{(\alpha^2 - \beta^2)D}.$$

Les coefficients P_1 et P_2 sont déterminés par les conditions aux limites qui sont fonction du traitement de surface.

Dans toute la suite nous supposerons l suffisamment grand pour que $\exp(-\beta l)$ soit négligeable devant l'unité, c'est-à-dire $\beta l > 1$. Ceci revient à dire qu'aucune paire électron-trou n'atteint la face non éclairée. Ceci entraîne $P_2 = 0$.

Nous avons fait implicitement l'hypothèse $\alpha l > 1$. Ceci n'est d'ailleurs pas une hypothèse supplémentaire car dans le résultat final le fait d'avoir α inférieur à β donne une valeur faible de l'effet.

La solution de l'équation générale est dans ce cas :

$$p = P_1 \exp(-\beta x) + P_3 \exp(-\alpha x)$$

P_1 va être fixé par les conditions aux limites sur la face éclairée.

Or, en surface, le courant est dirigé, non pas vers l'intérieur, comme le courant en volume, mais vers l'extérieur, car la surface est un lieu de forte recombinaison. Si p_0 est la densité au voisinage de la surface, le nombre de paires électron-trou qui s'y recombinent, par

unité de surface et par unité de temps, est de la forme σp, σ a les dimensions d'une vitesse, et le courant de surface est de la forme :

$$\frac{1}{e} j_p = -\sigma p_0$$

p_0 étant la valeur de p pour $x = 0$.

Si l'on exprime cette condition pour $x = 0$, il vient :

$$\frac{1}{e} [\vec{j}(x)]_0 = -\sigma p_0$$

donc :

$$\left(\frac{\partial p}{\partial x}\right)_0 = \frac{\sigma}{D} p_0,$$

une identification rapide fournit :

$$P_1 = \frac{\alpha L_0}{D(\alpha^2 - \beta^2)} \cdot \frac{\sigma + \alpha D}{\sigma + \beta D}$$

d'où finalement le nombre de porteurs présents en fonction de la distance :

$$p(x) = \frac{\alpha L_0}{D(\alpha^2 - \beta^2)} \cdot \frac{\sigma + \alpha D}{\sigma + \beta D} \exp(-\beta x) - \frac{\alpha L_0}{\alpha^2 - \beta^2} \exp(-\alpha x)$$

et pour la densité de courant :

$$\vec{j}_p(x) = -eD\frac{\partial p}{\partial x} = \frac{\alpha\beta L_0 De}{D(\alpha^2 - \beta^2)} \frac{\sigma + \alpha D}{\sigma + \beta D} \exp(-\beta x) - \frac{\alpha^2 L_0 e}{\alpha^2 - \beta^2} \exp(-\alpha x).$$

Calcul de l'effet photomagnétoélectrique. — Lorsque nous avons un courant quelconque c'est qu'il existe une force libre provoquant un courant de déplacement.

Soit $\vec{F}_0$ la force existant avant la présence du champ magnétique.

Soit $\vec{F}$ la force en présence du champ magnétique.

En tenant compte de la force de Lorentz on a :

$$\vec{F} = \vec{F}_0 + \frac{1}{c} \vec{v} \wedge \vec{H}, \qquad \text{avec} \quad \vec{v} = \mu\vec{F}$$

d'où une équation vectorielle en $\vec{F}$:

$$\vec{F} = \vec{F}_0 + \frac{1}{c} \mu\vec{F} \wedge \vec{H}$$

qui, pour la composante z de la force donne :

$$F_z = \frac{1}{c} \frac{\mu H F_0}{1 + \left(\frac{\mu H}{c}\right)^2} \cdot$$

Nous avons vu que le courant dû aux trous était donné par $\vec{j_p}(x)$; le courant dû aux électrons étant alors $-j_p(x)$.

Sous l'action du champ magnétique trous et électrons vont être défléchis et il apparaîtra un courant transversal :

$$\vec{j_z} = \frac{-\frac{2\mu H}{c}\vec{j_x}}{1+\left(\frac{\mu H}{c}\right)^2}.$$

Supposons qu'on demande au spécimen de ne débiter aucun courant (ou de débiter sur une impédance infinie, ou grande vis-à-vis de la sienne), il apparaîtra entre ses extrémités une différence de potentiel V_k. Pour ne pas avoir à tenir compte des effets de bout, il est préférable de découper le spécimen en tranches d'épaisseur dh, c'est-à-dire de raisonner sur une tranche limitée par deux équipotentielles. Il faut donc écrire que dans cette tranche la différence de potentiel dV_k qui apparaît doit donner naissance à un courant de conduction qui contrebalance le courant photo-magnétoélectrique, le courant total devant être nul. La conductance d'une telle tranche est donnée par :

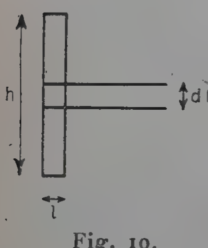


Fig. 10.

$$\frac{\left(Ne\mu l + 2e\mu\int_0^l p dx\right)}{dh}.$$

La tension qui apparaît aux extrémités de cette tranche est donnée par :

$$dV_k = \frac{\int_0^l \vec{j_z}\, dx dh}{Ne\mu + 2e\mu\int_0^l p dx}$$

et la tension totale aux bornes du spécimen :

$$V_k = \int dV_k = \frac{\frac{2\mu H h}{c}\int_0^l \vec{j_x}\, dx}{\left[1+\left(\frac{\mu H}{c}\right)^2\right]\left(Ne\mu l + 2e\mu\int_0^l p dx\right)}.$$

Or on a :

$$\int_0^l \vec{j_x} dx = eD[p(0) - p(l)]$$

$$\int_0^l p dx = \frac{P_1}{\beta} + \frac{P_3}{\alpha}$$

d'où :

$$V_k = \frac{\frac{2DhH}{c}(P_1 + P_3)}{\left[1+\left(\frac{\mu H}{c}\right)^2\right]\left[2\left(\frac{P_1}{\beta}+\frac{P_3}{\alpha}\right)+Nl\right]}.$$

Il vient finalement :

$$V_k = \frac{\frac{hHD}{c}}{1+\left(\frac{\mu H}{c}\right)^2} \frac{\frac{L_0 D(\alpha-\beta)}{\sigma+\beta D}\frac{\alpha\beta(\sigma+\beta D)}{\sigma(\alpha-\beta)+D(\alpha^2-\beta^2)}}{\frac{Nl}{2}\frac{\alpha\beta(\sigma+\beta D)}{\sigma(\alpha-\beta)+D(\alpha^2-\beta^2)}\frac{D(\alpha^2-\beta^2)}{\alpha}+L_0}.$$

Les résultats s'énoncent ainsi :

$$\boxed{V_k = \frac{AL_0}{B+L_0}}$$

avec :

$$\begin{cases} A = \dfrac{hH}{c\left[1+\left(\frac{\mu H}{c}\right)^2\right]} \dfrac{D^2\alpha\beta}{\sigma+D(\beta+\alpha)} \\ B = \dfrac{Nl}{2}\dfrac{\beta D(\sigma+\beta D)(\alpha+\beta)}{\sigma+D(\alpha+\beta)}. \end{cases}$$

Lorsque l'illumination augmente, l'effet sature et tend vers A.

Lorsque l'illumination est faible, V_k est proportionnel à L_0, c'est-à-dire :

$$V_k = \frac{A}{B}L_0.$$

Application au cas de la cuprite. — La formule théorique que nous avons établie s'écrit dans le cas de : $\alpha = \infty$

$$\sigma = 0$$

$$V_k = \frac{AL_0}{B+L_0}$$

avec :

$$A = \frac{hHD\beta}{c}$$

$$B = \frac{Nl}{2}D\beta^2.$$

Outre le fait que β est grand dans la cuprite, on a en plus N très faible ainsi que l.

N est faible parce que l'énergie d'activation des impuretés est suffisamment grande pour que ces dernières ne soient pas ionisées à la température de l'air liquide.

l est faible car les spécimens utilisés par Kikoin et Noskov étaient minces.

D'autre part D est faible de l'ordre de 1, mais le produit $D\beta$ est grand et le produit $Nl D\beta^2$ faible. Le résultat est que A est grand et B petit. Ceci entraîne que pour une lumière faible, on soit déjà près de la saturation.

Calculons β en supposant B faible, c'est-à-dire : $V_k = A$; ceci donne :

$$10^{-5}\,\beta = 5 \text{ volts},$$

d'où :

$$\beta = 5.10^5 \text{ cm}^{-1}$$

valeur beaucoup plus élevée que dans le germanium, ce qui correspond au fait bien connu que la durée de vie des porteurs minoritaires est faible dans la cuprite.

CALCULS ANNEXES

Calcul de la photorésistance. — Il est intéressant de comparer l'expression donnant la tension de l'effet photomagnétoélectrique, avec l'accroissement relatif de résistance dû à la lumière : $\frac{\Delta R}{R}$.

L'accroissement de conductivité dû à la lumière est donné par :

$$\frac{1}{\Delta R} = 2\mu e \int_0^l p\,dx = \frac{2\mu e}{h}\left(\frac{P_1}{\beta} + \frac{P_3}{\alpha}\right),$$

c'est-à-dire :

$$\frac{1}{\Delta R} = \frac{2\mu e}{h}\,\frac{L_0}{D\beta(\sigma + \beta D)}\,\frac{\sigma + D(\alpha + \beta)}{\alpha + \beta};$$

d'autre part, la résistance du spécimen en l'absence de lumière est donnée par :

$$R = \frac{h}{Ne\mu l}$$

d'où le rapport :

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{2}{Nl}\,\frac{L_0}{\beta D(\alpha + \beta)}\,\frac{\sigma + D(\alpha + \beta)}{\sigma + \beta D} = \frac{L_0}{B}.$$

On voit donc que la tension photomagnétoélectrique pour des lumières faibles est égale au produit, par A, du rapport $\frac{\Delta R}{R}$:

$$\boxed{V_{k(L_0 \text{ faible})} = \frac{\Delta R}{R} A}.$$

Influence de l'épaisseur du spécimen. — Nous nous placerons dans un cas particulier simple. Dans le cas général on devrait se reporter

aux équations donnant P_1 et P_2 ; les calculs sont possibles, mais longs et fastidieux.

Nous supposerons donc α infini ; toute la lumière est absorbée à la surface antérieure : cette dernière joue, en somme, le rôle de source de paires électron-trou.

L'équation de départ s'écrit alors :

$$\frac{\partial^2 p}{\partial x^2} \beta^2 p = 0.$$

Nous nous placerons dans le cas où la vitesse de recombinaison sur la face arrière est quelconque. Pour des raisons de commodité de calcul, nous prendrons l'origine sur la face arrière.

Les solutions de l'équation de départ sont de la forme :

$$p = P_1 \operatorname{ch} \beta l + P_2 \operatorname{sh} \beta l.$$

P_1 et P_2 sont déterminés par les conditions aux limites :

$$j(0) = -\sigma' p(0)$$
$$j(l) = \sigma p(l) - L_0$$

ce qui donne :

$$P_1 = \frac{L_0}{\left(\beta L_0 + \frac{\sigma\sigma'}{\beta D}\right) \operatorname{sh} \beta l + (\sigma' + \sigma) \operatorname{ch} \beta l}$$

$$P_2 = \frac{\sigma' L_0}{\beta D} \frac{1}{\left(\beta D + \frac{\sigma\sigma'}{\beta D}\right) \operatorname{sh} \beta l + (\sigma + \sigma') \operatorname{ch} \beta l}$$

comme l'effet Kikoin est donné par :

$$\frac{2hDH}{c\left[1 + \left(\frac{\mu H}{c}\right)^2\right]} \frac{p(l) - p(0)}{Nl + 2\int_0^l p\,dx}$$

on a :

$$p(l) - p(0) = P_1 (\operatorname{ch} \beta l - 1) + P_2 \operatorname{sh} \beta l$$

$$\int_0^l p\,dx = \frac{P_1}{\beta} \operatorname{sh} \beta l + \frac{P_2}{\beta} (\operatorname{ch} \beta l - 1)$$

d'où pour l'effet :

$$V_k = \frac{AL_0}{B + L_0}$$

avec :

$$A = \frac{hDH\beta}{c\left[1 + \left(\frac{\mu H}{c}\right)^2\right]} \frac{\operatorname{ch} \beta l - 1 + \frac{\sigma'}{\beta D} \operatorname{sh} \beta l}{\operatorname{sh} \beta l + \frac{\sigma'}{\beta D} (\operatorname{ch} \beta l - 1)}.$$

$$B = \frac{Nl\beta}{2} \frac{\left(\beta D + \frac{\sigma\sigma'}{\beta D}\right) \operatorname{sh} \beta l + (\sigma + \sigma') \operatorname{ch} \beta l}{\operatorname{sh} \beta l + \frac{\sigma'}{\beta D} (\operatorname{ch} \beta l - 1)}.$$

Effet quadratique. — Dans l'article de Frenkel, il est fait mention de l'effet suivant :

Lorsqu'un semi-conducteur illuminé est tourné d'un certain angle φ autour de l'axe des z, le champ magnétique produit, outre la tension de Kikoin V_k qui décroît dans le rapport $\cos \varphi/1$, une deuxième tension V_T qui apparaît entre les deux côtés de la lame. Cette deuxième tension est proportionnelle au carré du champ magnétique.

V_T

Fig. 11.

L'explication en est la suivante : la tension résulte de l'effet Hall sur le courant de conduction prenant naissance par suite de la tension de Kikoin.

Etudions l'effet Hall dû aux courants qui apparaissent dans le spécimen, dans la direction de l'axe des z. Le courant dû aux porteurs créés par la lumière et défléchis par le champ magnétique, $\vec{j}_k$, se décompose en $\vec{j}_{k_p}$ dû aux trous, $\vec{j}_{k_n}$ dû aux électrons ; ces deux courants sont dirigés dans la même direction et sont égaux, par suite leurs effets Hall se compensent. Seul le courant de conduction $\vec{j}_n$, dans le cas d'un germanium n, est susceptible de provoquer un effet Hall et c'est cet effet que l'on mesure :

$$V_T = \frac{V_k H \sin \varphi}{R_0 N e c l}$$

avec :

$$1/R_0 = \mu N e l d/h.$$

Cette formule donne bien la bonne dépendance en champ magnétique observée par Kikoin en $H^2 \cos \varphi \sin \varphi$.

Faisons le rapport :

$$\frac{V_T}{V_k} = \frac{H \sin \varphi}{c} \frac{\mu d}{h}.$$

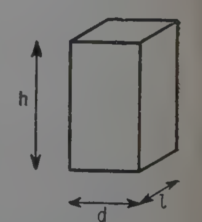


Fig. 12.

Cette formule est intéressante car elle permet d'atteindre la mobilité. Remarquons toutefois qu'il ne s'agit pas de celle des porteurs créés par la lumière, mais de la mobilité des porteurs existant à l'état libre dans le germanium non illuminé.

ÉTUDE EXPÉRIMENTALE

Les expériences qui vont suivre furent faites sur différents spécimens de germanium. Les premiers avaient de l'ordre de 2 à 3 cm. de long, 1 cm. de large, et 2 mm. d'épaisseur ; c'est sur ceux-ci que fut mis en évidence l'effet photomagnétoélectrique ; la tension apparaissant aux bornes dans ce cas était de l'ordre du mV.

Par la suite il a paru préférable d'opérer avec des spécimens de dimensions plus faibles, 8 mm. de longueur, 3 mm. de largeur, 1 mm. d'épaisseur ; de tels spécimens éclairés par l'image d'une lampe au zirconium à l'aide d'une lentille ouverte à f/1, donnaient des tensions de 30 mV, dans un champ de 2 000 œrsteds. C'est grâce à ces spécimens que put être étudiée la répartition spectrale de l'effet, avec les fentes du monochromateur ouvertes à 2/10 de millimètre, ce qui donnait une assez bonne précision.

Enfin un spécimen de 3 mm. de long, 3 mm. de large et 2/10 de millimètre d'épaisseur fut préparé ; c'est sur ce spécimen que fut étudiée la saturation en fonction de la lumière par la méthode indiquée plus loin.

Influence du traitement de surface. — Nous parlerons du traitement de surface en premier, car celui-ci a une grande importance si on veut pouvoir mettre en évidence l'effet.

D'après la théorie on voit que l'effet dépend fortement de la vitesse de recombinaison en surface et est inversement proportionnel à cette dernière. Ceci est d'ailleurs confirmé par les expériences que nous avons faites.

Nous avons d'abord mesuré la tension de Kikoin pour un spécimen poli mécaniquement avec du papier très fin de façon à obtenir un beau poli. La tension qui apparaissait était de l'ordre de 1 mV pour de forts éclairements. Il suffisait alors de deposer une goutte de mélange acide fluorhydrique, acide nitrique sur la surface, pour que la tension de Kikoin passe de 1 mV à 30 mV. Le polissage chimique obtenu de cette façon correspond d'après Shockley à $\sigma = 2\,000$ cm./s. alors que le traitement mécanique correspond à $\sigma = 10^4$ cm./s. Ceci est bien en accord avec nos expériences.

Nous remarquerons que, si nous avons pu mettre en évidence l'effet photomagnétoélectrique, c'est parce que nous avions pris préalablement soin de polir chimiquement la surface.

Etude en fonction de l'intensité lumineuse. — Le problème qui se pose dans ce cas consiste à faire varier l'intensité lumineuse sans toucher à la répartition spectrale de la lumière tombant sur le spéci-

men. Ceci n'aurait guère d'importance si l'on disposait d'une source n'émettant que des longueurs d'onde violemment absorbées, ou bien d'un filtre coupant toutes les longueurs d'onde au-delà de 1,3 μ. Malheureusement, nous ne disposions pas de ces éléments. Aussi avons-nous procédé de la façon suivante :

a) *pour des faibles lumières :* nous avons réalisé le montage suivant : la source lumineuse était placée au foyer d'un miroir aluminé ouvert à f/3, ce dernier renvoyait un faisceau parallèle sur un deuxième miroir et le spécimen était placé de façon à être complètement illuminé par la focale verticale de ce miroir. Pour faire varier l'intensité lumineuse on disposait d'une fente verticale à largeur variable placée perpendiculairement au faisceau parallèle.

Ce montage a l'avantage d'envoyer sur une surface fixe, une intensité lumineuse variable sans modifier la répartition spectrale, et sans trop changer la répartition spatiale de l'éclairement.

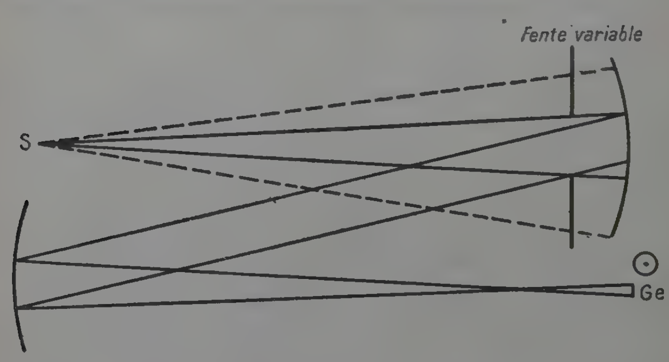


Fig. 13.

Pour mesurer l'intensité lumineuse, on utilisait une thermopile dont la fente avait la même surface que le spécimen.

Le résultat des mesures fut le suivant :

V_k = tension de Kikoin.

V_{th} = tension due à la thermopile.

V_k	V_{th}	V_k/V_{th}
118	110	0,93
103	98	0,9
99	89	0,91
87	79	0,89
75	67	0,89
62	55	0,94
48	45	0,94
36	34	0,95

Le rapport est sensiblement constant, ce qui vérifie bien la linéarité de l'effet pour de faibles lumières ;

b) *aux fortes lumières :* le montage précédent ne permet pas d'obtenir de fortes lumières à cause de la trop faible ouverture des miroirs ; d'autre part, étant donné que l'étude de la saturation en fonction de la lumière permet d'atteindre le coefficient A, valeur-limite de la tension de Kikoin aux fortes lumières, il est intéressant de pouvoir tirer cette valeur sans avoir à mesurer l'intensité lumineuse.

Le procédé suivant permet de réaliser cette condition. Il consiste à mesurer à la fois la tension de Kikoin et sa dérivée. Dans ce but, on éclaire le spécimen avec une forte lumière continue à laquelle on superpose une faible lumiere modulée à 125 périodes. L'intensité de la faible source restant fixe, on fait alors varier la forte lumière.

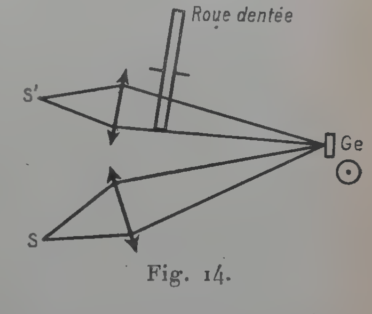


Fig. 14.

Dans l'expérience la lumière continue était fournie par une lampe au zirconium suivie d'une lentille ouverte à f/1 ; la faible lumière était fournie par un éclairage galvanométrique.

La tension de l'effet photomagnétoélectrique était mesurée par un simple millivoltmètre, l'accroissement de tension dû à la faible lumière était mesuré grâce à un amplificateur 125 périodes. Il est nécessaire d'opérer sur un spécimen de faibles dimensions de façon à pouvoir disposer d'assez de lumière pour pouvoir observer la saturation. Cette dernière est mise en évidence d'une façon frappante ; il suffit de couper la forte lumière avec un écran, pour voir le signal dû à la faible lumière croître.

Soit V_p la tension de Kikoin due à la forte lumière, soit ΔV la tension due à la faible lumière ΔL alternative.

D'après la théorie, on a :

$$V_p = \frac{AL_0}{B + L_0}$$

d'où en dérivant par rapport à L_0 :

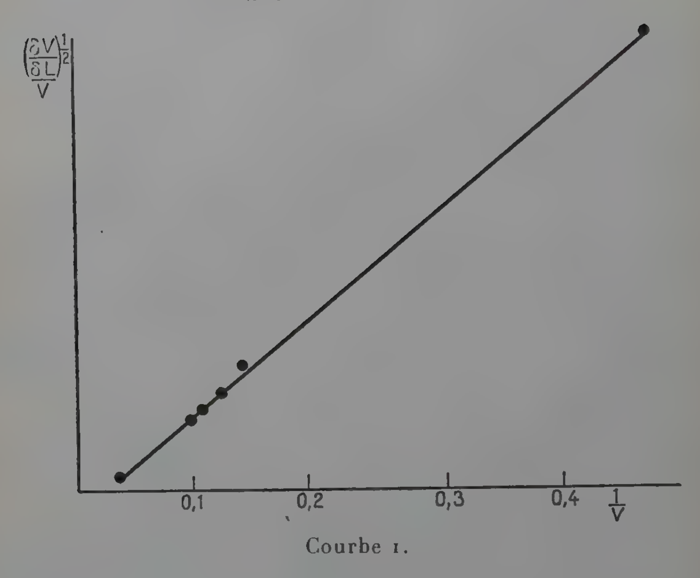
$$\frac{\partial V}{\partial L_0} = \frac{-AL_0 + A(B + L_0)}{(B + L_0)^2} = \frac{AB}{(B + L_0)^2}$$

si l'on fait le rapport $\dfrac{V_p}{\frac{\partial V}{\partial L_0}}$ on obtient :

$$\frac{V_p^2}{\frac{\partial V}{\partial L_0}} = \frac{AL_0^2}{B}$$

d'où :

$$\left(\frac{V^2}{\frac{\partial V}{\partial L_0}}\right)^{1/2} = \left(\frac{A}{B}\right)^{1/2} L_0,$$



Courbe 1.

d'autre part :

$$\frac{1}{V} = \frac{B}{AL_0} + \frac{1}{A}$$

d'où si l'on trace la courbe $1/V$ en fonction de $\frac{\left(\frac{\Delta V}{\Delta L_0}\right)^{1/2}}{V}$ on trouve une droite (cf. courbe).

Les résultats expérimentaux suivants furent trouvés :

V en 10^{-1} mV	$\frac{V}{L_0}$	$\frac{1}{V}$	$\frac{\left(\frac{\Delta V}{\Delta L_0}\right)^{1/2}}{V}$
—	—	—	—
0	4,5		
2	4,0	0,5	1
7	3,5	0,143	0,267
8	2,7	0,125	0,205
9	2,6	0,111	0,175
10	2,2	0,100	0,148
30	0,9	0,033	0,031

Ces résultats donnent $A = 12,7$ mV.

Etude en fonction de la longueur d'onde. — 1) Appareillage. — Pour cette étude on dispose d'une lampe à arc au zirconium de puissance 100 watts, et d'un monochromateur double à miroirs et à prismes de sel gemme; l'avantage du monochromateur double est de réduire fortement la lumière parasite.

On forme sur la fente l'image de la source, et la lumière est modulée à 125 périodes à l'aide d'une roue dentée à cinq dents fixée sur un moteur synchrone quatre pôles. Derrière la fente de sortie on place le spécimen verticalement de façon à l'illuminer complètement, ce dernier étant placé dans un champ magnétique de 2 100 œrsteds fourni par un aimant de magnétron.

Le signal produit par l'effet est envoyé à l'entrée d'un amplificateur dont l'impédance d'entrée est de 1 mégohm; le signal amplifié est envoyé dans un démodulateur dont la tension de sortie est proportionnelle à l'amplitude du signal d'entrée; celle-ci est amplifiée à l'aide d'un amplificateur à courant continu, puis envoyée sur un enregistreur.

D'autre part le monochromateur est muni d'un moteur qui fait tourner les prismes à vitesse constante.

On a donc directement sur l'enregistreur la tension de l'effet photomagnétoélectrique en fonction de la longueur d'onde.

2) Etude expérimentale. — Nous avons d'abord étudié la répartition spectrale de la source à l'aide d'une thermopile (celle-ci présente une intensité pratiquement constante entre 1,6 μ et 2 μ) puis la répartition spectrale de l'effet et enfin celle de la photorésistance.

Les résultats que nous allons annoncer ne correspondent pas à la répartition spectrale réelle; toutefois ils constituent une bonne approximation si l'on admet que l'intensité de la source est constante dans la région des longueurs d'onde comprise entre 1,6 μ et 2 μ.

En fait c'est surtout la comparaison des deux répartitions spectrales qui est intéressante.

a) *Répartition spectrale de l'effet.* — L'effet commence à décroître à partir de 1,5 μ et est tombé à zéro pour 1,8 μ (cf. courbe $V_k(\lambda)$).

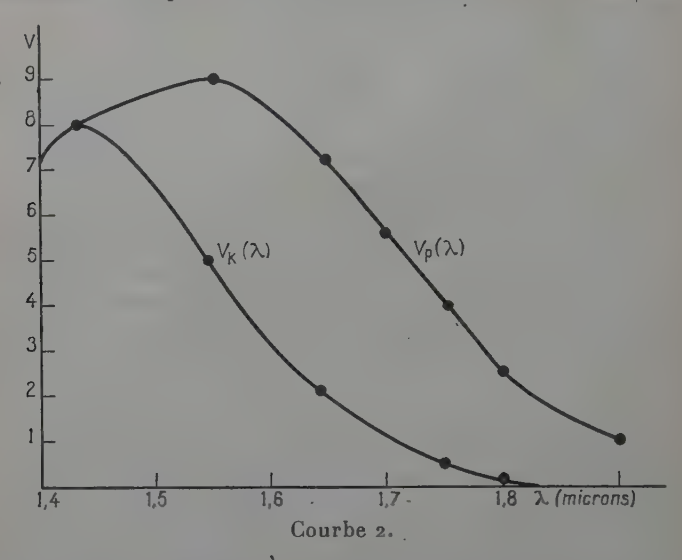
b) *Répartition spectrale de la photorésistance.* — La photorésistance commence à décroître à partir de 1,55 μ et est pratiquement tombée à zéro pour 2 μ (cf. courbe $V_p(\lambda)$).

Il y a donc un net décalage de longueur d'onde entre la coupure de l'effet Kikoin et la coupure de la photorésistance.

Ce fait est bien expliqué par la théorie : en effet la photorésistance est influencée uniquement par le nombre de porteurs libérés en volume, alors que l'effet Kikoin n'apparaît que lorsqu'on est en présence d'un gradient de concentration, d'où la nécessité d'une lumière plus fortement absorbée.

Dans le cas de la cuprite la réponse spectrale différente est due à

ce que la largeur de la bande interdite est plus grande que dans le cas du germanium ; d'autre part à la température de l'air liquide les impuretés ne sont pas ionisées, mais sont susceptibles de l'être par



Courbe 2.

action de lumière rouge ; c'est ce qui explique dans ce cas l'action particulière de la lumière rouge, qui a pour effet de diminuer la résistance du spécimen et par suite de diminuer l'effet.

Application de l'étude spectrale à la mesure des coefficients β et σ. — La comparaison entre l'accroissement relatif de résistance dû à la lumière et la tension photomagnétoélectrique pour un champ magnétique faible et une lumière monochromatique faible, montre qu'il existe entre ces deux quantités la relation :

$$V_k = \frac{\Delta R}{R} A \text{ (voir p. 70).}$$

Comme :

$$A = \frac{HD\beta h}{c} \frac{\alpha}{\alpha + \beta + \frac{\sigma}{D}}$$

on voit que l'étude du rapport $\frac{V_k}{\frac{\Delta R}{R}}$ nous donne, pour des lumières faibles fortement absorbées, c'est-à-dire pour α infini, le produit Dβ, et pour des lumières monochromatiques non fortement absorbées, c'est-à-dire pour α fini, la valeur de $\frac{\alpha}{\alpha + \beta + \frac{\sigma}{D}}$. Comme d'après les

mesures de Fan et Becker [1] on connaît la dépendance de α en fonction de la longueur d'onde, l'étude de A en fonction de λ permet de vérifier si l'on obtient une valeur constante pour $\beta + \frac{\sigma}{D}$. Connaissant β d'après la première mesure et $\beta + \frac{\sigma}{D}$ d'après la deuxième, on en tire σ.

L'étude de B pourrait nous donner des renseignements sur ces valeurs, mais ce coefficient est plus difficile à atteindre expérimentalement que A car il est nécessaire pour l'obtenir de connaître L_0.

On pourrait évidemment tirer A de la comparaison des courbes $V_p(\lambda)$ et $V_k(\lambda)$; nous avons cependant pu mettre au point une méthode de zéro qui s'est avérée sensible.

Cette méthode consiste à annuler l'effet photomagnétoélectrique par l'effet dû à la photorésistance.

On procède avec une lumière modulée à 125 périodes. Il apparaît d'une part, aux bornes du spécimen la tension alternative V_k due à l'effet photomagnétoélectrique et, si l'on branche aux bornes du spécimen, en plus, une pile, une tension alternative $i\Delta R$ due à la photorésistance. On fait varier i jusqu'à annuler la tension photomagnétoélectrique ; au zéro, on a $i_0\Delta R = V_k$.

Nous avons employé pour ce faire un des montages suivants (le deuxième montage permet de lire directement le courant et, connaissant la résistance du spécimen, d'obtenir A sans faire intervenir les éléments du circuit, car : $A = Ri_0$).

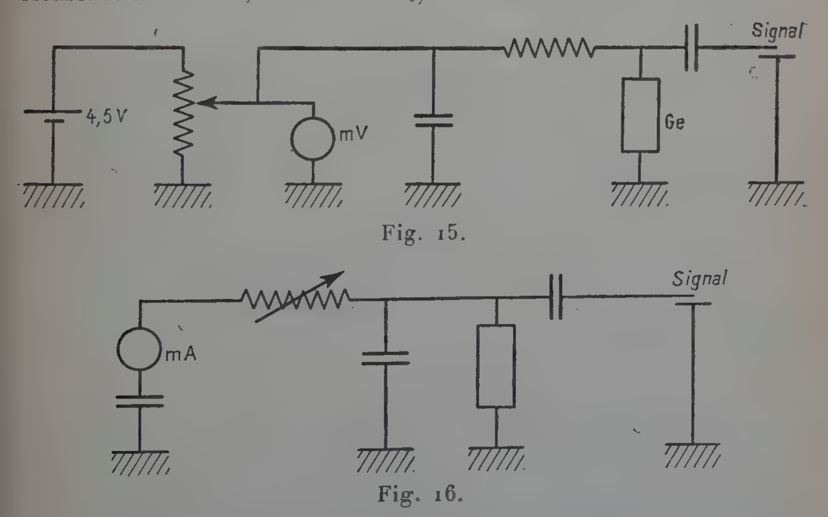


Fig. 15.

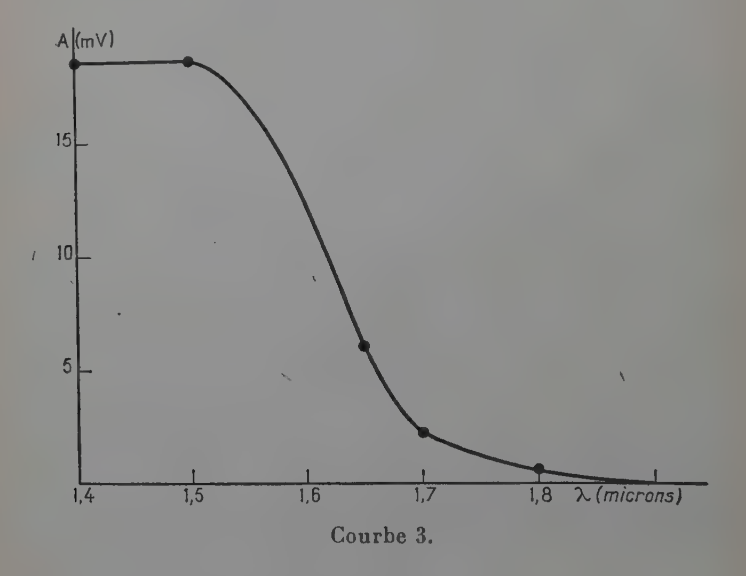
Fig. 16.

[1] *Infra red properties of Silicon and Germanium. Semi conducting Materials.* Butterworth, London, 1951, 132.

Les résultats furent les suivants :

α	λ	A(mV)
∞	1,3 μ	18,5
41	1,5 μ	18,5
13,2	1,65 μ	6,2
3,2	1,70 μ	2,1
0,75	1,80 μ	0,48

pour $\alpha = \infty$, on a :
$A = \frac{HD\beta h}{c}$ avec $A = 18{,}5$ mV, $h = 2$ mm. $H = 2\,100$ œrsteds, le produit $D\beta$ prend dans ce cas la valeur 3 700.



Courbe 3.

Si l'on prend $D = 70$, on obtient pour β, coefficient de recombinaison en volume, $\beta = 53$.

Pour α non infini, on a :

$$A = \frac{HD\beta h}{c} \frac{\alpha}{\alpha + \beta + \frac{\sigma}{D}}$$

on doit donc trouver pour $\beta + \frac{\sigma}{D}$ une valeur constante en posant $\beta + \frac{\sigma}{D} = 82$, on vérifie bien la dépendance de A en fonction de λ

(cf. courbe $A(\lambda)$) ; cette courbe représente A en fonction de λ avec $\beta + \frac{\sigma}{D} = 82$, les points sont des points expérimentaux.

De la connaissance de $D\beta$ on tire :

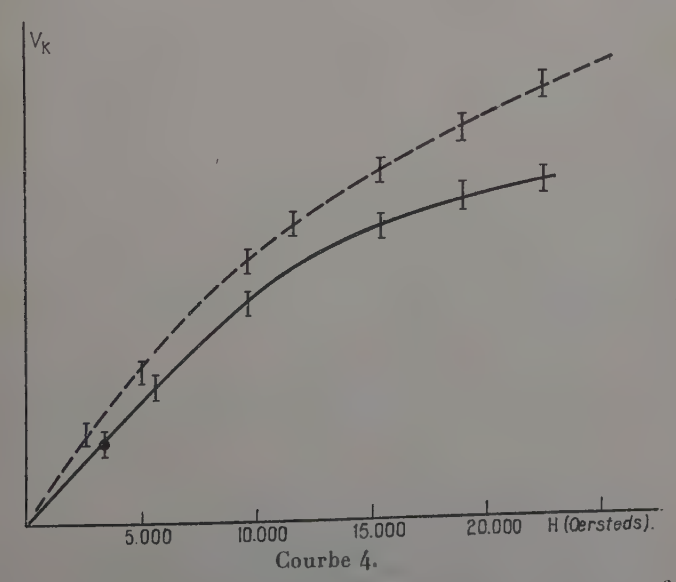
$$\frac{1}{\tau} = D\beta^2 = 5,2\ \mu/\text{sec}.$$

valeur relativement faible due partiellement à la recombinaison sur les bords.

Connaissant β et $\beta + \frac{\sigma}{D}$ on tire σ qui ici prend la valeur de 2 240 cm^{-1}, valeur correspondant à un polissage chimique moyen.

Les études que nous avons faites montrent que pour que cette expérience ait la signification voulue, il faut se méfier des effets parasites. Il est nécessaire de plus que le spécimen ait des dimensions relativement larges pour éviter l'erreur due à la recombinaison sur les bords, que l'épaisseur soit suffisamment grande pour que la condition $\beta l \gg 1$ soit réalisée, sinon il faut tenir compte de la recombinaison sur la face arrière ; enfin la hauteur illuminée doit être délimitée précisément, car une trop grande imprécision sur cette dernière donnerait pour β des valeurs par trop imprécises.

Etude en fonction du champ magnétique. — a) *Champs faibles.* — Nous avons étudié l'influence des champs faibles en plaçant le spécimen au centre de bobines de Helmholtz ; l'effet se faisait sentir à



Courbe 4.

partir de champs de 1 œrsted. Le spécimen employé dans cette méthode ne donnait que peu d'effet ; par suite nous avons préparé des spécimens 30 fois plus sensibles avec lesquels il n'est pas impossible de détecter des champs magnétiques de 0,03 œrsted.

b) *Champs forts.* — Nous avons étudié la dépendance de l'effet en fonction du champ magnétique jusqu'à des champs de 22 000 œrsteds grâce à l'électroaimant qui est arrivé récemment au Laboratoire (ce dernier était conçu spécialement pour donner des champs magnétiques homogènes dans un assez grand volume).

On mesurait simultanément le champ magnétique grâce à une balance de Cotton, et l'effet photomagnétoélectrique. La lumière servant à illuminer le spécimen était dans ce cas fournie par une lampe à ultra-violet pour éviter des effets thermiques.

Nous avons tracé sur la figure V_k en fonction de H pour deux intensités lumineuses différentes. Cette courbe est en bon accord avec la théorie et donne pour la mobilité des valeurs de l'ordre de 2 300 cm^2/volt/sec.

CONCLUSION

Nous avons mis en évidence sur le germanium l'effet photomagnétoélectrique :

— donné une théorie en bon accord avec l'expérience,

— étudié la dépendance de l'effet en fonction de la longueur d'onde, de l'intensité lumineuse, du champ magnétique,

— mis au point une méthode de mesure du coefficient de recombinaison des électrons et des trous en volume, qui a une grande importance dans la technologie du transistor, ainsi que de la vitesse de recombinaison en surface.

En plus, nous avons noté le faible bruit de fond de cet effet, par rapport au bruit de fond de la photorésistance. Ceci n'a rien d'étonnant car la principale cause de bruit de fond dans les semi-conducteurs est outre le bruit de fond de Nyquist, le bruit de « flicker » qui est proportionnel au carré du courant circulant dans le semi-conducteur. Ce dernier n'existe pas dans l'effet photomagnétoélectrique car il ne passe pas de courant.

(Travail effectué au Laboratoire de Physique de l'Ecole normale supérieure).

BIBLIOGRAPHIE

I. K. Kikoin et M. Noskov. — *Phys. Zeits. für Sov. Union*, 1934, **5**, 586.
J. Frenkel. — *Phys. Zeits. für Sov. Union*, 1935, **8**, 185.
Fan et Becker. — *Infra Red properties of Silicon and Germanium Semiconducting materials*. Butterworth, London, 1951, 132.
William Shockley. — *Electrons and Holes in Semi conductors*. D. van Nostrand Company, Inc.
R. N. Hall. — *Physical Review*, 1952, **87**, 387.
E. Lifshitz. — *Phys. Zeits. für Sov. Union*, 1936, 9, 641.
Groetzinger. — *Phys. Zeits.*, 1935 [5], **36**, 169-179.
T. Moss et coll. — *Proc. Phys. Soc.*, Oct. 1953.
J. Oberly. — Conférence au Meeting de l'Am. Phys. Society. Nov. 1953.

AUTRES PUBLICATIONS

P. Aigrain-H. Bulliard. — *Comptes Rendus*, 1953, **236**, 595.
P. Aigrain-H. Bulliard. — *Comptes Rendus*, 1953, **236**, 672.

LE TRAINAGE MAGNÉTIQUE DE FLUCTUATION [1]

Par Jean-Claude BARBIER

INTRODUCTION

1. Historique. — En 1885, Ewing (1, 2) a le premier mis en évidence dans les phénomènes d'aimantation de fils de fer doux une influence du temps qui ne pouvait être attribuée aux courants induits. De nombreux auteurs ont observé depuis lors qu'après une modification brusque du champ appliqué à un corps ferromagnétique l'aimantation continue à varier postérieurement au processus de variation du champ. Le traînage magnétique est précisément cette variation d'aimantation dans le temps, à l'exclusion de celle due aux courants induits ou éventuellement à des transformations d'ordre physique ou chimique. Ce phénomène très complexe a fait l'objet de nombreux travaux (1 à 26).

L'expérience montre que le traînage est d'autant plus intense que l'époque de l'observation est plus rapprochée de celle de la variation du champ ; aussi beaucoup d'expérimentateurs se sont efforcés d'effectuer des mesures au bout de temps très courts. Mais, dans ces conditions, l'influence parfois prépondérante des courants induits rend l'interprétation des résultats si délicate que l'existence même du traînage a pu être contestée (21, 22).

Des expériences prolongées pendant un temps assez long pour que l'influence des courants induits soit rendue négligeable ont prouvé l'existence d'un traînage magnétique qui peut, dans certains cas, être très important.

Pendant longtemps, on n'a pas réussi à coordonner les résultats. Récemment une théorie générale, due à L. Néel (12), a éclairé l'ensemble en établissant tout d'abord qu'il existe au moins deux catégories de traînage magnétique : le traînage réversible ou traînage de diffusion et le traînage irréversible ou traînage de fluctuation. Les deux traînages peuvent être superposés dans une même substance.

Les travaux qui se rattachent au traînage réversible sont les plus anciens (1 à 13). Snœk (7), le premier, a émis l'idée que la diffusion

(1) Thèse présentée le 27 mars 1953 à la Faculté des Sciences de l'Université de Grenoble pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques.

d'atomes étrangers, de carbone ou d'azote, dans le réseau d'un cristal ferromagnétique peut provoquer du traînage magnétique. Dans deux importants mémoires (12, 13), L. Néel a développé la théorie de ce traînage de diffusion. Rappelons-en brièvement les caractéristiques essentielles. Le traînage réversible n'est observable que sur certaines substances et entre certaines limites de température. La variation d'aimantation qui suit une variation donnée du champ tend vers une limite déterminée lorsque le temps croît indéfiniment. Le traînage de diffusion se traduit aussi par une diminution de la perméabilité initiale à mesure que le temps écoulé depuis la désaimantation augmente. Au traînage réversible est associé, dans un champ alternatif, un angle de perte qui mesure le retard de phase de l'induction par rapport au champ magnétique et qui varie beaucoup en fonction de la température. Le traînage réversible obéit au principe de superposition : soit $J(t)$ la variation d'aimantation associée à un champ $H(t)$, soit $J'(t)$ la variation d'aimantation associée à un champ $H'(t)$, la variation d'aimantation associée à :

$$H''(t) = H(t) + H'(t) \text{ sera } J''(t) = J(t) + J'(t).$$

Le traînage irréversible, découvert par F. Preisach (14), a fait l'objet de travaux peu nombreux (14 à 19). Cet auteur a supposé que l'agitation thermique pouvait être une cause de traînage magnétique. L'étude quantitative des fluctuations thermiques a d'abord conduit L. Néel (16) à édifier une théorie du traînage des ferromagnétiques en grains fins, dans lesquels l'agitation thermique entraîne une rotation irréversible de l'aimantation. Elle lui a permis de donner une interprétation remarquable des propriétés des terres cuites décrites par E. Thellier (33). Développant sa théorie, L. Néel (17) l'a adaptée aux substances massives dans lesquelles des variations de l'aimantation peuvent être dues à des déplacements de paroi, spécialement dans les champs faibles.

2. But de ce travail. — Sous la direction de M. le Professeur L. Néel, avec sa théorie pour guide, je me suis proposé dans ce travail de faire une étude d'ensemble du traînage irréversible, d'en préciser les lois et de discuter, à la lumière des résultats obtenus, le domaine de validité des hypothèses formulées.

Dans une première partie, j'ai mis en évidence le traînage dans le domaine de Rayleigh et énoncé les lois auxquelles il obéit. La mise au point de dispositifs de mesure sensibles, magnétomètre et appareils d'induction, a été nécessaire pour poursuivre cette étude dans une échelle de temps de $1/40$ à $4 \cdot 10^6$ secondes.

Dans une deuxième partie, j'ai montré que les lois établies dans les champs faibles restent valables dans tout le domaine d'hystérésis. En effectuant des mesures sur des substances ferromagnétiques variées, j'ai cherché à établir la généralité du traînage de fluctuation.

La troisième partie a été consacrée à l'étude des variations d'aimantation provoquées par l'action d'un léger recuit, d'un champ alternatif ou d'une compression. Les résultats s'inscrivent dans des formules qui font apparaître un parallélisme entre ces effets et le traînage magnétique.

Enfin dans une quatrième partie, j'ai étudié les pertes magnétiques dans un champ variable. Après avoir établi qu'il existe un rapport simple entre les pertes dans un champ tournant et les pertes dans un champ alternatif, j'ai mis au point un dispositif expérimental permettant la séparation des pertes dans un champ tournant faible. La théorie et l'expérience montrent que les pertes résiduelles, après déduction des pertes par hystérésis et par courants de Foucault, se rattachent directement au traînage.

PREMIÈRE PARTIE

LE TRAINAGE MAGNÉTIQUE DANS LE DOMAINE DE RAYLEIGH

I. — Hypothèses théoriques sur le traînage irréversible.

3. Rappel de la théorie de L. Néel. — En partant de l'interprétation théorique des lois de Rayleigh qu'il a donnée (30, 31), L. Néel montre que, pour étudier l'aimantation dans les champs faibles, on peut subdiviser un ferromagnétique en grains fictifs indépendants caractérisés par deux champs critiques a et b relatifs, le premier aux valeurs croissantes du champ magnétique, le deuxième aux valeurs décroissantes. D'après la théorie de l'hystérésis ferromagnétique (28) l'aimantation d'un grain initialement négative, ne pourra être retournée sous l'action d'un champ h que si h est supérieur ou égal à a. L. Néel pose d'une manière tout à fait générale qu'en présence des fluctuations thermiques ce retournement peut se produire même si h est inférieur au champ critique a ; il est régi par une constante de temps τ donnée par la formule 6 de son mémoire (17) :

$$a - h = S_v(Q + \log \tau) \qquad (1)$$

où S_v et Q ne dépendent pas de a et de b.

Pour une valeur τ de la constante de temps, à un instant t la proportion P des grains retournés est égale à $1 - e^{-t/\tau}$. P est pratiquement nul pour des valeurs de τ notablement plus grandes que t et égal à l'unité pour des valeurs de τ notablement plus petites que t.

Partant de ces hypothèses, L. Néel établit alors que l'effet des fluctuations thermiques, sur l'ensemble des domaines, au bout d'un intervalle de temps t, est équivalent à celui d'un champ fictif $\pm H_i(t)$

ajouté au champ appliqué. La valeur absolue maximum de $H_i(t)$ croît avec le temps et s'écrit :

$$H_i(t) = S_v(Q + \log t). \tag{2}$$

S_v est fonction du volume moyen v affecté par les discontinuités d'aimantation. L'expression 2 ne reste valable que si t est assez grand pour que $Q + \log t$ ne s'annule pas.

L. Néel a montré ensuite que le mécanisme le plus efficace suivant lequel les fluctuations thermiques aident les parois à franchir les obstacles qui s'opposent à leur déplacement paraît être l'action du champ magnétique interne de dispersion créé par les oscillations thermiques de l'aimantation spontanée autour de sa direction moyenne. Il a calculé, dans un volume v affecté par une discontinuité de Barkhausen, la valeur moyenne H_m de la composante du champ de dispersion suivant une direction donnée. Une analyse subtile lui a permis de préciser l'évolution de H_m dans le temps, de calculer la probabilité de passage des parois au-dessus des obstacles et d'en déduire les valeurs de S_v et de Q. Au voisinage de $t = \tau$ on a :

$$S_v = \sqrt{\frac{4\pi kT}{3v(Q + \log \tau)}}. \tag{3}$$

$$Q = 2Q' + \log \tau. \tag{4}$$

k est la constante de Boltzmann.

L. Néel a démontré que la valeur de Q' donnée par l'équation 87 de son mémoire est voisine de 20 pour toutes les substances ferromagnétiques. L'expression 2 étant justifiée, pour préciser l'influence du champ de traînage, il faut évaluer l'effet d'un petit champ superposé au champ appliqué. Soit J l'aimantation acquise par un ferromagnétique après une variation du champ dans un certain sens. Une variation ultérieure ΔH, supposée petite, dans le même sens, entraîne une variation ΔJ de l'aimantation :

$$\Delta J = (a + c)\Delta H \tag{5}$$

tandis qu'une variation $-\Delta H$ en sens opposé produit une variation $-\Delta J'$ de l'aimantation plus faible en valeur absolue :

$$\Delta J' = a . \Delta H. \tag{6}$$

a est la susceptibilité différentielle réversible, c la susceptibilité différentielle irréversible et $a + c$ la susceptibilité totale. En partant de l'état d'aimantation (J, H), si au champ H on superpose un petit champ supplémentaire h alternativement positif et négatif, l'aimantation varie entre les valeurs :

$$J_1 = J + (a + c)h$$

et :

$$J_2 = J_1 - 2ah.$$

L'aimantation moyenne a pour expression :

$$\frac{J_1 + J_2}{2} = J + ch.$$

Le champ fictif de traînage $H_i(t)$ changeant constamment de sens, la variation d'aimantation qui lui est associée est, d'après ce qui précède :

$$\Delta J(t) = c.H_i(t). \qquad (7)$$

Le nom de traînage irréversible se justifie par cette proportionnalité de $\Delta J(t)$ à la susceptibilité différentielle irréversible c. Les équations 2, 3, 4 et 7 permettent d'expliciter d'une manière très simple les lois du traînage, notamment de déterminer l'action du temps, d'un léger recuit ou d'un faible champ alternatif sur l'aimantation, et d'établir l'expression des pertes énergétiques associées au traînage dans un champ alternatif (L. Néel (17)).

4. Les lois de Rayleigh. — En 1887, Lord Rayleigh (29) a établi expérimentalement les lois qui lient l'intensité d'aimantation au champ magnétique dans les champs faibles par rapport au champ coercitif. Depuis 1943 seulement, les travaux de L. Néel (30, 31) ont apporté de ces lois une interprétation théorique basée sur l'analyse des déplacements d'une paroi de séparation de deux domaines élémentaires de Weiss.

Ces lois s'énoncent ainsi :

Après désaimantation, la courbe de première aimantation d'une substance ferromagnétique a pour équation :

$$J = a_0 h + bh^2. \qquad h \ll H_c \qquad (8)$$

Lorsque le champ magnétique a atteint, par valeurs décroissantes, une valeur H_1, l'aimantation ayant dans ces conditions une valeur J_1, et que l'on fait alors croître le champ à partir de H_1, l'aimantation J s'écrit :

$$J - J_1 = a_0(H - H_1) + \frac{b}{2}(H - H_1)^2. \qquad H > H_1 \qquad (9)$$

De même, lorsque le champ magnétique atteint, par valeurs croissantes, une valeur H_2 et l'aimantation une valeur J_2, et que l'on fait alors décroître le champ, l'aimantation s'écrit algébriquement :

$$J - J_2 = a_0(H - H_2) - \frac{b}{2}(H - H_2)^2. \qquad H < H_2 \qquad (10)$$

Le coefficient a_0 affecte la partie réversible de l'aimantation, le coefficient b la partie irréversible.

Des équations 9 et 10 il ressort que, dans le domaine de Rayleigh, la valeur de la susceptibilité différentielle réversible est toujours

égale à a_0 tandis que la susceptibilité différentielle irréversible est fonction du processus suivi. Pour une valeur donnée de l'aimantation, les équations de Rayleigh permettent de calculer la susceptibilité irréversible si l'on connaît l'histoire magnétique du corps depuis la dernière désaimantation.

Au point (J, H) de la courbe de première aimantation la susceptibilité irréversible est :

$$c = 2bh. \qquad (11)$$

Sur la branche descendante du cycle d'hystérésis obtenue en faisant décroître le champ de H_m à H elle est donnée par :

$$c = b(H_m - H). \qquad |H| < |H_m| \qquad (12)$$

A la rémanente, pour $H = 0$:

$$c = bH_m. \qquad (13)$$

C'est seulement dans le domaine de Rayleigh qu'existent des lois aussi précises pour définir l'état magnétique d'un corps. Aussi paraissait-il intéressant, en se basant sur elles, d'étudier le traînage magnétique dans les champs faibles.

II. — Dispositifs expérimentaux.

5. Choix et désaimantation des échantillons. — Les travaux sur le traînage de diffusion montrent qu'il est d'autant plus facile à mettre en évidence, toutes choses égales d'ailleurs, que la substance est plus douce magnétiquement : il est par exemple très apparent dans un fer doux contenant une petite quantité de carbone. Comme le traînage dû aux fluctuations thermiques affecte *a priori* toutes les substances ferromagnétiques, il semble indiqué, pour l'isoler du traînage de diffusion, de l'étudier tout d'abord dans les substances magnétiquement dures : alnicos, œrstite, ferrocobalt, etc.

Nous avons fait des mesures sur des échantillons de forme et de dimensions variées, mais pour la plupart parallélépipédiques ou cylindriques. L'aimantation dans ces corps n'est pas rigoureusement uniforme. De la mesure des moments magnétiques nous avons déduit les valeurs moyennes des aimantations.

L'état magnétique initial de l'échantillon est défini par une désaimantation dans un champ alternatif décroissant lentement jusqu'à zéro. Un rhéostat liquide à niveau variable nous a permis d'obtenir facilement des variations continues du champ dans le rapport de 1 000 à 1.

La difficulté des mesures dans le domaine de Rayleigh vient de ce que, les aimantations étant faibles, le dispositif expérimental doit

être assez sensible pour permettre l'observation de très faibles variations d'aimantation. Nous avons essentiellement utilisé deux types d'appareils : un magnétomètre et deux appareils d'induction.

6. Magnétomètre. — a) *Tube magnétométrique.* — Le magnétomètre construit surtout pour mesurer les variations d'aimantation rémanente dans le domaine de Rayleigh doit être sensible et ne pas être affecté par les variations du champ magnétique extérieur. C'est pourquoi l'équipage mobile comporte quatre aimants en poudre de fer comprimée, en forme de disques (diamètre : 10 mm., épaisseur 1 mm.), fixés sur une même tige, conformément au principe du magnétomètre doublement astatique décrit par R. Forrer (34) et E. Thellier (33) entre autres. L'aimantation des deux disques extrêmes est de sens opposé à celle des deux disques placés au centre. Les axes des aimants sont goupillés dans un tube de duralumin (diamètre intérieur : 1 mm.) suspendu à un fil de tungstème (diamètre : 15 μ ou 30 μ) comme l'indique la figure 1. Un miroir permet de ramener la mesure de la déviation du magnétomètre à la lecture du déplacement d'un spot lumineux sur une échelle graduée. L'amortissement à courants induits est réglable, grâce à la forme tronconique de l'évidement des pièces de cuivre entourant les aimants extrêmes. L'ensemble équipage mobile et amortisseurs est mis à l'abri des courants d'air dans un tube de verre fermé. Un aimant permanent sert à régler le zéro et la sensibilité de l'appareil. Le magnétomètre très rigidement scellé au mur est pratiquement insensible aux perturbations mécaniques. Mais il reste influencé par les fortes perturbations magnétiques en dehors des heures creuses pendant lesquelles il permet des mesures précises.

b) *Bobines d'aimantation.* — Deux groupes identiques de deux bobines de Helmholtz, d'axes perpendiculaires au tube magnétométrique, sont disposés symétriquement par rapport au tube. Ainsi les champs créés par les deux groupes se compensent au voisinage du magnétomètre et sont sans action notable sur celui-ci. Le champ d'aimantation, sensiblement uniforme dans tout le volume occupé par l'échantillon situé au centre du premier groupe de bobines, est donné en fonction de l'intensité du courant par :

$$H_{\infty} = 52{,}3\, I_{A}.$$

Une bobine d'étalonnage, de mêmes dimensions que l'échantillon et de surface connue, placée au centre du deuxième

Fig. 1.

Fig. 1. — Equipage mobile du magnétomètre.

groupe de bobines provoque, quand elle est parcourue par un courant i, la même déviation du magnétomètre qu'un échantillon de moment $S.i$.

Le déplacement de l'aimant directeur permet de faire varier la sensibilité de l'appareil dans de larges limites. Pour les substances du type alnico, étudiées dans le domaine de Rayleigh, la sensibilité en général utilisée est telle qu'une déviation de 1 mm du spot lumineux correspond à une intensité d'aimantation de 8.10^{-4} u. e. m. pour un échantillon de volume voisin de 5 cm³.

Pour certaines séries de mesures le magnétomètre s'est montré pratique parce qu'il permet de suivre l'évolution de l'aimantation d'un échantillon au cours d'une mesure par une observation directe du déplacement du spot lumineux. Aux heures où le laboratoire est peu troublé magnétiquement, le zéro de l'appareil est stable et la sensibilité constante.

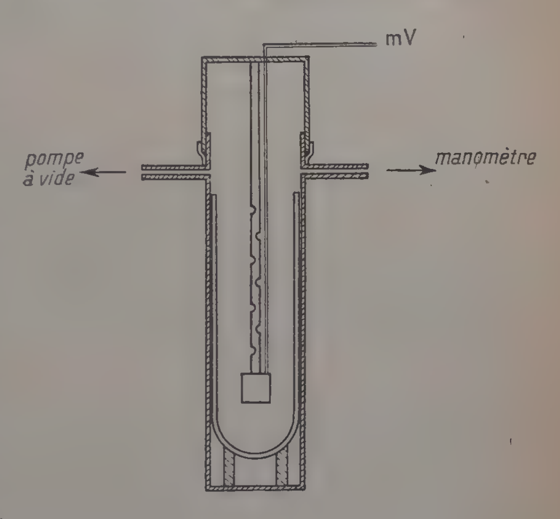


Fig. 2. — Mesure à basse température.

c) *Mesures à différentes températures.* — Nous avons été amenés à faire varier la température au cours des mesures, soit pour étudier le traînage à différentes températures, soit pour mesurer l'influence d'une variation de température sur l'aimantation rémanente de l'échantillon. En immergeant l'échantillon dans un vase Dewar convenablement disposé contenant de l'hydrogène liquide, de l'azote liquide ou de l'oxygène liquide, il est facile de le maintenir aux températures suivantes : 20°4 K, 77°2 K, 90°3 K. Les pertes sont assez faibles et la capacité du vase Dewar suffisante pour que l'on puisse maintenir l'échantillon dans l'hydrogène liquide pendant une demi-heure environ. On peut le conserver dans l'azote ou dans l'oxygène liquide pratiquement indéfiniment. En faisant un vide partiel au-dessus du liquide on abaisse sa température : dans l'azote on peut descendre jusqu'à 63° K et dans l'hydrogène jusqu'à 13°9 K. Pour atteindre ces deux températures, nous avons modifié l'appareillage conformément à la figure 2. La température commandée par la pres-

sion est mesurée au moyen d'un couple constantan-cuivre étalonné aux points d'ébullition de l'hydrogène et de l'azote à la pression ordinaire et au palier de solidification de l'azote.

Pour les mesures à des températures intermédiaires entre la température ambiante et la température de l'oxygène liquide, nous avons eu recours à des échangeurs de température. Un courant d'hydrogène refroidi dans l'air liquide amène des frigories à un bain d'alcool dans lequel trempe l'échantillon (fig. 3). La température de l'alcool est fonction du débit d'hydrogène. L'équilibre thermique est lent à s'établir, mais quand la température d'équilibre est atteinte, elle peut être maintenue constante pendant longtemps. Le concours de A. Lacaze nous a été précieux pour le calcul et la construction de cet appareillage.

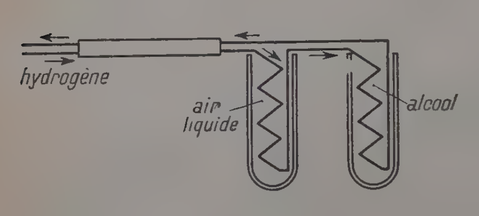


Fig. 3. — Echangeur de température.

Pour les mesures de traînage à différentes températures, l'état initial a toujours été défini par une désaimantation à la température de mesure. Les échantillons ont été désaimantés sur place, les bobines de Helmholtz du magnétomètre servant de bobines de désaimantation.

7. Appareils d'induction. — a) *Principe.* — Pour les mesures pour des champs plus intenses et pour les mesures sous champ, deux appareils d'induction ont été construits sur le même principe.

Deux bobines induites identiques b et b' montées en opposition et reliées aux bornes d'un galvanomètre sensible sont disposées au centre d'une bobine magnétisante qui crée un champ sensiblement uniforme dans un grand volume. L'échantillon amené rapidement du centre de b au centre de b', provoque une déviation du galvanomètre proportionnelle à son moment magnétique. La constante de proportionnalité entre la variation de flux $\Delta\Phi$ à travers b et b' et le moment magnétique de l'échantillon est déterminée expérimentalement en remplaçant l'échantillon par une bobine équivalente. La constante de proportionnalité entre $\Delta\Phi$ et la déviation du galvanomètre a été mesurée au moyen d'une mutuelle inductance que nous avons étalonnée (1,02 mH). Le galvanomètre Kipp employé a une période grande (30 s.) par rapport à la durée de déplacement de l'échantillon.

b) *Caractéristiques du premier appareil.* — La bobine magnétisante est un solénoïde de 2 m. de long déjà utilisé par P. Dejean (27). Sur un support de carton de 60 mm. de diamètre intérieur, sont enroulées dix couches de spires en fil de cuivre de 3 mm. de diamètre.

On peut mettre en circuit soit la première couche seule soit les dix réunies. Le nombre de spires par centimètre est de 29,38 pour les dix couches réunies. Les bobines *b* et *b′* ont 5 500 spires chacune

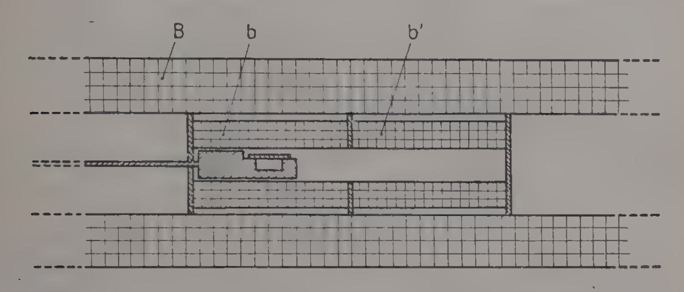


Fig. 4. — Principe de l'appareil d'induction.

environ, en fil de cuivre de 3/10 mm. de diamètre enroulé sur un tube de 36 mm. de diamètre intérieur.

L'échantillon est centré dans l'évidement d'un cylindre de duralumin qui glisse à frottement doux dans le tube support de *b* et *b′* (fig. 4). Une longue tige permet de déplacer l'échantillon à la main. Deux butées dont on peut régler la position sur la tige limitent la course de l'échantillon.

Un échantillon ayant une aimantation arbitraire et étant situé initialement au centre de *b*, nous avons représenté sur la figure 5 la déviation enregistrée au galvanomètre en fonction de son déplacement exprimé en centimètres. Le maximum de déviation correspond à un déplacement jusqu'au centre de *b′*. Si la position initiale ou finale est modifiée de 5 mm., il n'en résulte qu'une diminution inférieure à 1 o/o de la déviation du galvanomètre. Les erreurs sur le réglage de la position de la butée inférieures à 1/2 mm. n'entrent donc pas en jeu.

A un échantillon de moment magnétique égal à 1 u. e. m. correspond une variation maximum de flux d'environ 14 000 Mx.

Ce premier appareil permet des mesures dans des champs intenses mais l'exiguïté du volume subsistant autour de l'échantillon rend difficiles les mesures à très basse température.

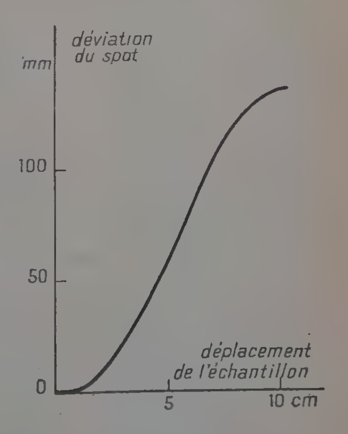


Fig. 5. — Réglage du déplacement de l'échantillon.

c) *Caractéristiques du deuxième appareil.* — Le solénoïde B comprend 50 bobines plates (diamètre intérieur : 150 mm.) de 180 spires chacune, en fil de 7/10 mm., entassées les unes sur les autres. Un réglage bobine par bobine permet d'obtenir un champ uniforme dans un grand volume. La variation de champ dans l'espace parcouru par l'échantillon est inférieure à 1/3 000. Les bobines b et b' possèdent chacune 5 010 spires de fil de 3/10 mm. enroulées sur un tube de bakélite (diamètre intérieur : 70 mm.). L'espace entourant l'échantillon est suffisant pour loger un vase Dewar permettant de conserver de l'hydrogène liquide pendant toute la durée de la mesure.

Mais au moyen de cet appareil (fig. 6) il n'est pas possible d'obtenir des champs aussi intenses qu'avec le premier ; sa sensibilité est plus faible. Le déplacement d'un échantillon ayant un moment magnétique de 1 u. e. m. donne seulement une variation de flux de 8 300 Mx environ. La courbe de déviation du galvanomètre en fonction du déplacement de l'échantillon est tout à fait semblable à la courbe de la figure 5.

L'ensemble formé par le magnétomètre et les deux appareils d'induction nous a permis d'explorer le traînage dans des domaines étendus de champ et de température, chacun des appareils ayant son domaine d'utilisation propre.

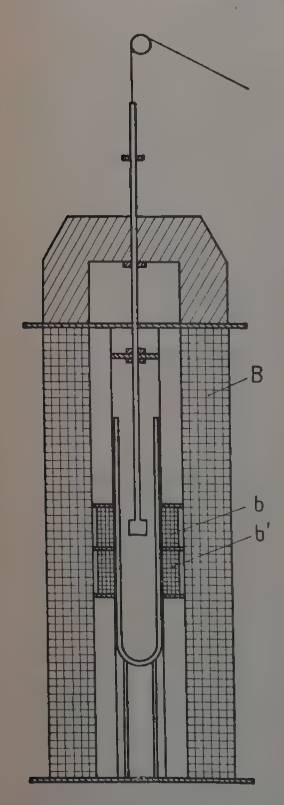


Fig. 6. — Schéma de l'appareil d'induction.

III. — Résultats des mesures dans les champs faibles.

8. Traînage de l'aimantation rémanente. — Un échantillon initialement désaimanté est soumis à un champ magnétique h, faible par rapport au champ coercitif ($h < 1/5\,H_c$), appliqué pendant une durée t. Après suppression du champ magnétisant, l'échantillon conserve une certaine aimantation rémanente dont nous avons suivi l'évolution en fonction du temps.

Nous appellerons t' le temps écoulé entre la suppression du champ h et l'époque de l'observation de la rémanente. t' est toujours pris assez grand pour que les courants induits soient devenus négligeables. Nous avons veillé à ce qu'il n'y ait pas de variations d'aimantation dues à des variations de température, à des chocs ou à des vibrations.

L'expérience montre que l'aimantation rémanente diminue quand t' augmente. Au magnétomètre, après suppression de h, on observe un déplacement du spot d'abord rapide puis ralenti quand t' augmente. La figure 7 traduit la variation de J_r en fonction de t' pour un alnico, pour différentes valeurs du champ h. La diminution relative d'aimantation est importante dans les champs faibles. Voici par exemple les résultats pour un champ magnétisant $h = 41$ œ ; les aimantations sont données en unités arbitraires :

t' s	30	60	120	240	480	960	1 920
J_r	131,7	125,9	119,1	113,3	107,6	102,7	97

Entre les instants $t' = 30$ s. et $t' = 1\,920$ s., l'aimantation rémanente a diminué de plus de 25 o/o. Pour des champs plus faibles la diminution relative serait plus grande encore.

Si l'on porte les valeurs de J_r en fonction de log t' les points obte-

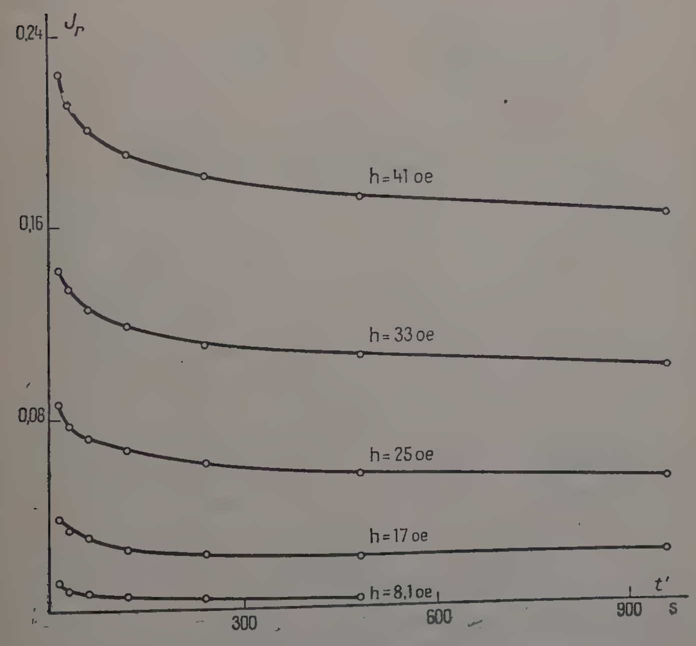


Fig. 7. — Traînage de l'aimantation rémanente.

nus se situent approximativement sur des droites. La pente de ces droites est sensiblement proportionnelle au champ magnétisant.

La représentation est meilleure si l'on porte les valeurs de $\sqrt{J_r}$ en fonction de log t'. On obtient alors un réseau de droites dont la pente est indépendante de h (fig. 8). Dans toutes ces mesures la durée d'application de h a été la même, soit 10 secondes.

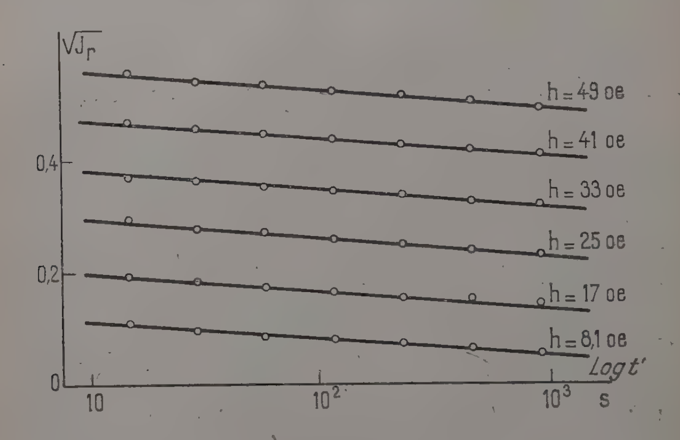


Fig. 8. — Traînage de l'aimantation rémanente.

Nous avons fait d'autres séries d'expériences, en prenant le même champ magnétisant, mais en faisant varier la durée de son application. Sur la figure 9 ont été transcrites les valeurs de $\sqrt{J_r}$ en fonction de log t' pour différentes valeurs de t, h restant le même. On obtient un réseau de droites parallèles : leur pente ne dépend donc pas de t. Le principe de superposition dont nous avons énoncé la validité pour le traînage réversible, n'est pas applicable. Pour une durée d'application t_1 du champ, l'aimantation mesurée à l'instant t' après la suppression du champ (fig. 10) est, en première approximation :

$$J' = A' - B \log t'.$$

A' et B ne dépendent pas de t'. Pour une durée d'application t_2 du champ, l'aimantation mesurée à l'instant $t' + t_1$ est :

$$J'' = A'' - B \log (t_1 + t').$$

Si le principe de superposition était valable, pour une application du champ de durée $t_1 + t_2$, on aurait :

$$J = A' + A'' - B \log t' (t_1 + t');$$

Fig. 9. — Symétrie des lois en log t et en log t'.

t : durée d'aimantation ;

t' : intervalle de temps écoulé depuis la suppression du champ magnétisant.

or, l'expérience montre que l'expression de l'aimantation est de la forme :

$$J = A - B \log t'.$$

Nous avons retrouvé ces mêmes lois sur de nombreuses substances : alnicos, ferro-cobalt, poudre de fer comprimée, magnétite, ferrites, alnico recuit, œrstite, nickel en poudre, etc. Nous en donnons une liste sur la figure 20.

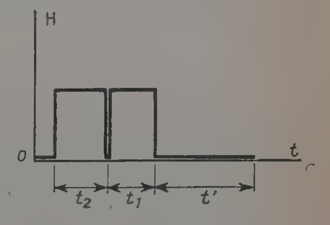


Fig. 10. — Non-validité du principe de superposition.

9. Interprétation de ces résultats. — En partant des considérations théoriques des paragraphes 3 et 4, pour calculer l'aimantation rémanente au bout d'un temps t' après la suppression du champ h, on prend l'aimantation moyenne due au champ

fluctuant $\pm$ $H_i(t')$ après aimantation dans le champ $h + H_i(t)$, soit :

$$J_r = \frac{b}{2}[h + H_i(t) - H_i(t')]^2. \qquad (14)$$

D'après l'équation 2 on obtient :

$$J_r = \frac{b}{2}[h + S_v(\log t - \log t')]^2. \qquad (15)$$

La formule 15 établit, en accord avec les résultats expérimentaux précédemment cités, que la variation de $\sqrt{J_r}$ est proportionnelle à $\log t'$. S_v est la constante caractéristique du traînage. Elle a les dimensions d'un champ. L'échec au principe de superposition est mis en évidence par l'indépendance des termes en $\log t$ et en $\log t'$. Du point de vue physique, cela signifie que ce ne sont pas les mêmes domaines de Weiss qui interviennent dans le traînage de la rémanente et dans le traînage sous champ. Le parallélisme des droites de la figure 8 prouve que, au moins dans le domaine des champs faibles, S_v est indépendant de h.

Pour la détermination de la constante S_v, on peut remarquer que la relation 15 conduit à l'équation :

$$\frac{\sqrt{J_{r_1}}}{\sqrt{J_{r_2}}} = \frac{h - S_v \log \frac{t'_1}{t}}{h - S_v \log \frac{t'_2}{t}} \qquad (16)$$

où J_{r1} et J_{r2} sont les aimantations mesurées aux instants t'_1 et t'_2. Si la sensibilité de l'appareil de mesure reste constante dans l'intervalle de temps $t'_1 \ldots t'_2$, pour déterminer S_v il n'est pas nécessaire de faire un étalonnage des aimantations pour chaque mesure, et J_r peut s'exprimer en unités arbitraires, par exemple en millimètres de déviation du spot.

Toutes les formules précédentes sont établies en supposant nul le coefficient de champ démagnétisant de l'échantillon. Mais en réalité il n'en est pas ainsi et on ne mesure qu'une rémanente apparente, dans un champ qui n'est pas nul mais égal au champ démagnétisant $-NJ_r$. N désigne le coefficient de champ démagnétisant de l'échantillon. D'autre part, la variation d'aimantation due au traînage entraîne une variation du champ démagnétisant et la substance n'évolue plus dans un champ constant. La variation $\Delta J'$ de l'aimantation rémanente apparente est inférieure à la variation ΔJ que l'on observerait dans le cas idéal où l'échantillon aurait un coefficient de champ démagnétisant nul :

$$\Delta J' = \lambda . \Delta J. \qquad \lambda < 1$$

Nous démontrerons ultérieurement (paragraphe 16), dans un cas général, que :

$$\lambda = \frac{1}{1 + N(a + c)} .$$

La susceptibilité différentielle irréversible c prend la valeur $b.h$ à la rémanente.

La formule 16 reste applicable en première approximation si J_{r_1} et J_{r_2} désignent les aimantations rémanentes apparentes et h le champ réel d'aimantation. Nous donnons ci-dessous les résultats relatifs à deux échantillons d'un même alnico ($H_c = 560$ œ, $a_0 = 0{,}374$) mais de formes différentes :

	N	b	$\frac{1}{\lambda} = 1 + N(a + c)$	S_v
Echantillon 1. . .	0,90	$3{,}21 . 10^{-4}$	1,36	1,63
Echantillon 2. . .	1,55	$3{,}23 . 10^{-4}$	1,63	1,73

Les valeurs de $1/\lambda$ ont été calculées pour $h = 100$ œ, c'est-à-dire à la limite du domaine de Rayleigh.

S_v a été calculé pour les deux échantillons par la formule 16. L'écart entre les deux valeurs trouvées peut être attribué aux erreurs de mesures et au fait que le champ démagnétisant n'est pas uniforme dans l'échantillon.

Pour tous les échantillons cylindriques que nous avons utilisés nous avons déterminé les valeurs du coefficient de champ démagnétisant à l'aide des courbes données par R. M. Bozorth et D. M. Chapin (42). Pour les échantillons parallélépipédiques nous les avons mesurés par la méthode de Peschard (43).

10. Accommodation des cycles d'aimantation. — L'aimantation rémanente acquise par un échantillon à la suite de l'application d'un champ est fonction de la durée d'application de ce champ. La formule 25 du mémoire de L. Néel établit que tout se passe comme si le champ agissant était :

$$h_e = S_v(Q + \log \int_0^t e^{h/S_v} dt) \qquad (17)$$

équation valable dans le cas général où h est une fonction de t.

Pour n applications de durées $t_1, t_2, \ldots t_n$, d'un champ constant h_0,

deux applications successives étant séparées par une phase de durée t_0 pendant laquelle le champ est nul, l'équation 17 s'écrit :

$$h_e = S_v \left\{ Q + \log\left[(n-1)t_0 + (t_1 + t_2 + \dots t_n)e^{h_0/S_v}\right] \right\}. \quad (18)$$

Nous avons vérifié que, dans chacune de nos expériences, effectuées sur des échantillons variés, le terme $(n-1)t_0$ était négligeable par rapport au terme $(t_1 + t_2 + \dots t_n)e^{h_0/S_v}$.

Par exemple, dans les expériences relatives à un alnico recuit ($H_c = 200$ œ, $S_v = 0,3$ œ), les champs minima h_0 appliqués sont de l'ordre de 20 œ soit environ 70 S_v et les temps t_0 au maximum égaux à 5 000 t_1.

Dans ces conditions, l'expression 18 se réduit à :

$$h_e = h_0 + S_v[Q + \log(t_1 + t_2 + \dots t_n)]. \quad (19)$$

D'après cette équation, n applications d'un champ constant pendant des durées $t_1, t_2, \dots t_n$, séparées par des périodes de champ nul devraient communiquer à l'échantillon la même aimantation qu'une seule application de ce champ de durée $t = t_1 + t_2 + \dots t_n$.

Ce résultat est contredit par l'expérience.

Nous avons mesuré, au bout d'un même intervalle de temps t' après la suppression du champ h_0, les aimantations rémanentes acquises en suivant les deux processus précédents. Nous avons constaté que l'aimantation J_{r_n} résultant de n applications successives de h_0 était supérieure à l'aimantation J_r résultant d'une seule application de h_0, la durée totale d'application de h_0 étant dans les deux cas la même.

Pour préciser les lois de variation de l'aimantation rémanente en fonction de la durée d'application du champ magnétisant, nous avons recherché si l'existence de cette différence $\Delta J_n = J_{r_n} - J_r$ était imputable au traînage ou à un phénomène indépendant. Nous avons procédé, sur l'alnico ($H_c = 200$ œ; $S_v = 0,3$ œ) déjà cité, aux expériences suivantes :

1° Expériences telles que $t_1 = t_2 = \dots t_n = 5s$.

n	1	2	3	4	5	6	7
t s	5	10	15	20	25	30	35
$10^{+2}.\Delta J_n$ . .	0	6,9	9,2	10,4	11,1	11,9	12,4

2° Expériences telles que $t_1 = t_2 = \ldots t_n = 0{,}035s$.

n.	1	2	3	4	5	6	7
t s	0,035	0,07	0,105	0,140	0,175	0,21	0,245
$10^{+2}.\Delta J_n$ . .	0	7	9,1	10,1	11,2	11,5	12,2

3° Expériences telles que $t_1 = 5s \quad t_2 = t_3 \ldots t_n = 0{,}035s$.

n.	1	2	3	4	5	6	7
t s	5	5,035	5,07	5,10	5,14	5,17	5,21
$10^{+2}.\Delta J_n$ . .	0	6,8	9,3	10,4	11,4	12	12,9

On constate que, dans les trois séries d'éxpériences, les valeurs de ΔJ_n sont les mêmes.

La comparaison des tableaux 1 et 2 conduit à affirmer que ΔJ_n est indépendant de la durée t_1 de chaque application du champ.

La durée totale t d'application varie beaucoup en fonction de n dans les séries 1 et 2, alors qu'elle n'en dépend pratiquement pas dans la troisième série. La concordance des valeurs trouvées pour ΔJ_n dans les trois séries entraîne que la variation d'aimantation ΔJ_n ne peut être attribuée à un effet du traînage.

Ces variations d'aimantation sont donc dues à un phénomène indépendant qu'on peut considérer comme une accommodation des cycles d'aimantation.

Certains aspects en ont été étudiés par L. Lliboutry (37) sous le nom de reptation des cycles de champ.

L'accommodation est très variable suivant la nature des échantillons et l'intensité du champ appliqué.

Elle semble, d'après nos essais, d'autant plus grande que la substance est magnétiquement plus

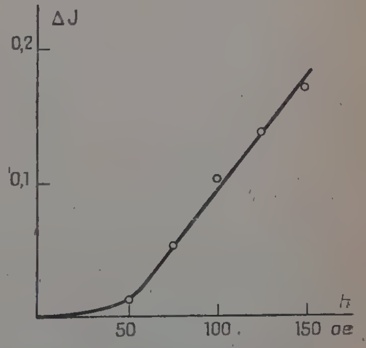


Fig. 11. — Accommodation des cycles d'aimantation.

douce. Nous avons groupé sur la figure 11 les valeurs de ΔJ_n pour $n = 25$ en fonction du champ pour le même alnico. Il apparaît que l'accommodation, presque négligeable dans les champs faibles, devient rapidement croissante au voisinage de 50 œ.

On évite les effets de l'accommodation en décrivant des cycles symétriques : on applique alternativement, pendant la même durée, des champs $+ H$ et $- H$, deux applications successives du champ étant séparées par une phase pendant laquelle le champ est nul. On observe qu'après chaque application de $+ H$, l'aimantation reprend la même valeur. Il n'y a pas d'accommodation.

11. Variation de l'aimantation rémanente en fonction de la durée d'application du champ magnétisant. — Des résultats précédents relatifs à l'accommodation, il résulte que pour déterminer l'influence de la durée d'aimantation sur la valeur de la rémanente J_r, il faut, avant chaque aimantation dans un champ $+ H$, soit désaimanter l'échantillon, soit lui appliquer un champ $- H$.

Ces précautions étant prises, nous avons trouvé que $\sqrt{J_r}$ croît proportionnellement à $\log t$, le temps écoulé t' entre la suppression de $+ H$ et la mesure de J_r étant toujours le même. Si l'on fait varier le paramètre t', on obtient un réseau de droites parallèles en portant les aimantations rémanentes en ordonnées et $\log t$ en abscisse. La figure 9 fait apparaître la symétrie des lois en $\log t$ et en $\log t'$, résultat en accord avec la formule théorique 15. Les pentes des deux réseaux de droites sont les mêmes.

Si l'on ne prend pas soin d'éliminer l'accommodation, la pente des droites $(\sqrt{J_r}, \log t)$ peut-être plus grande que la pente des droites $(\sqrt{J_r}, \log t')$.

12. Traînage sous champ. — Il est difficile de déterminer directement le traînage sous champ sur la courbe de première aimantation car il affecte seulement la partie irréversible de l'aimantation, tandis qu'on mesure simultanément la partie réversible et la partie irréversible. Le rapport m de la partie irréversible $b.h^2$ de l'aimantation à sa partie réversible $a_0.h$ s'écrit :

$$m = \frac{b.h}{a_0} \quad \text{ou encore} \quad m = \frac{b.H_c}{a_0} \cdot \frac{h}{H_c}.$$

Mais, comme l'a montré L. Néel (31), $\frac{b.H_c}{a_0}$ varie peu d'un ferromagnétique à l'autre et reste un peu inférieur à l'unité pour les subtances magnétiquement dures, de sorte que si $\frac{h}{H_c}$ est toujours voisin de 1/10, m conserve aussi la même valeur.

Pour un alnico tel que : $H_c = 540$ œ ; $a_0 = 0{,}374$; $b = 3{,}22 . 10^{-4}$, dans un champ $h = 1/10\ H_c$, on trouve alors :

$$m = 4.6 . 10^{-2}.$$

Cette valeur est faible. La variation d'aimantation due au traînage, pourcentage déjà faible de l'aimantation irréversible, devient un pourcentage infime de l'aimantation totale mesurée sous champ.

Mais le traînage peut être déduit d'un procédé indirect qui découle de la théorie de L. Néel (16). Nous avons commencé par montrer, dans le cas du traînage de la rémanente, que le procédé indirect conduisait aux mêmes résultats que le procédé direct.

Communiquons une certaine aimantation rémanente à un échantillon en le soumettant à un champ H_1 pendant une durée t_1. Au bout

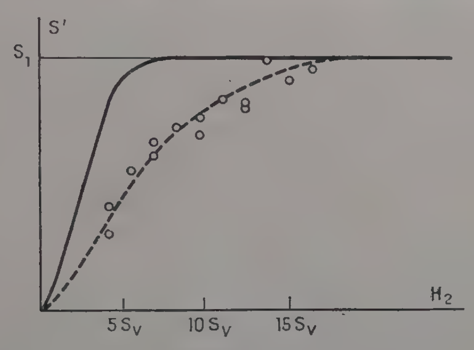


Fig. 12. — Procédé indirect de détermination de la constante de traînage.

d'un temps t'_1 après la suppression de H_1, appliquons en sens inverse un champ $- H_2$ (H_2 petit par rapport à H_1). La variation d'aimantation ΔJ due à l'application de $- H_2$ pendant une durée t_2 est mesurée avec une bobine d'induction et un galvanomètre. Si, t_1 et t_2 gardant une valeur fixe, on fait varier t'_1, l'expérience montre que ΔJ est fonction de t'_1 et que, pour un champ H_2 donné :

$$\frac{d(\Delta J)}{d \log t'_1} = S'.$$

S' ne dépend que de H_2. Sur la figure 12 nous avons porté les valeurs de S', obtenues avec un échantillon d'alnico, en fonction de H_2. S' croît en même temps que H_2 et tend vers une limite asymptotique S_1 pratiquement atteinte pour $H_2 = 30$ œ $\sim 17\ S_v$.

Sur le même échantillon nous avons étudié le traînage de la rémanente J_{r_1} par la mesure directe des moments magnétiques à l'appareil d'induction. Des résultats numériques, il ressort que :

$$S_1 = \frac{d\ J_{r1}}{d \log t'_1} \quad \text{c'est-à-dire : } S_1 = b . H_1 . S_v.$$

La formule 17 fournit l'explication de ces résultats. Appliquée à la mesure indirecte du traînage, elle conduit à :

$$S' = \frac{d(\Delta J)}{d \log t_1'} = b.H_1.\frac{S_v}{1 + \frac{t_1'}{t_2}.e^{-H_2/S_v}} \qquad (20)$$

S' tend donc vers $b.H_1.S_v$ quand $\frac{t_1}{t_2}.e^{-H_2/S_v}$ est petit par rapport à l'unité.

Nous avons tracé sur la figure 12 la courbe $S'(H_2)$ déduite de la formule 20. La courbe expérimentale s'écarte de la courbe théorique, probablement à cause d'une dispersion des valeurs de S_v : cet étalement est suggéré par la théorie de L. Néel car S_v y dépend de v.

Etendons le procédé indirect aux mesures de traînage sous champ. L'échantillon étant soumis à un champ H, au temps t donnons à ce champ un accroissement h pendant une durée t'. Soit ΔJ la variation d'aimantation due à l'accroissement du champ. L'application de l'équation 17 donne :

$$S'' = \frac{d(\Delta J)}{d \log t} = \frac{2b.H.S_v}{1 + \frac{t}{t'}.e^{-H/S_v}}. \qquad (21)$$

L'expérience fournit aussi dans ce cas une courbe $S''(h)$ asymptotique à une valeur S_2 qu'il paraît donc justifié de considérer comme égale au produit de la constante caractéristique du traînage par $2b$H. En comparant le traînage sous champ et le traînage de la rémanence, nous avons rassemblé les résultats suivants :

pour un alnico de $H_c = 540$ œ	$S_2 = 2,2\ S_1$
pour du fer doux de $H_c = 1,8$ œ	$S_2 = 2,2\ S_1$
pour un ferrite Ni-Zn de $H_c = 0,36$ œ	$S_2 = 1,9\ S_1$.

Pour un acier mi-dur L. Lliboutry (37) trouve que le traînage sous champ est double du traînage de la rémanente.

La comparaison des formules théoriques 20 et 21 donne $S_2 = 2\ S_1$. Comme la précision des mesures est de l'ordre de 10 0/0, l'accord entre la théorie et les résultats expérimentaux est satisfaisant.

13. Traînage sur une grande échelle de temps. — La variation logarithmique de l'aimantation est une conséquence de l'étalement du spectre des constantes de temps τ définies au paragraphe 3. Pour rechercher les limites de ce spectre, il est nécessaire d'étudier le traînage sur une grande échelle de temps. Cette étude est facilitée par la symétrie des lois en log t et en log t'. Réduire la durée de l'aimantation à un temps très court est en effet plus aisé que mesurer l'aimantation très peu de temps après la variation du champ magnétisant.

Par contre il est plus simple de suivre l'évolution de l'aimantation pendant très longtemps que de maintenir le champ magnétisant constant pendant une longue durée. Nous avons fait des mesures dans l'intervalle de temps 1/40 s. à 4.10^6 s.

a) *Mesures dans les temps courts.* — Nous avons fait varier la durée d'application du champ magnétique de 1/40 s. à 60 s., l'aimantation rémanente étant toujours mesurée au bout d'un temps t', constant après la suppression du champ.

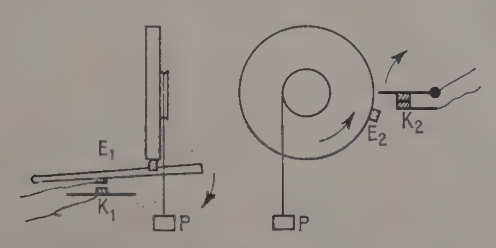


Fig. 13. — Montage pour les mesures dans les temps courts.

Le circuit d'alimentation de la bobine d'aimantation doit être fermé pendant un temps très court. A cette fin, nous avons fait appel à un dispositif mécanique (figure 13). Une roue de bicyclette entraînée par un poids P porte sur sa jante deux ergots E_1 et E_2. Le circuit d'alimentation de la bobine comprend deux interrupteurs K_1 et K_2. Initialement K_2 est fermé et K_1 ouvert. Pour fermer K_1 on appuie sur un levier qui, par l'intermédiaire de E_1, empêche le mouvement de la roue. A l'instant où K_1 est fermé, la roue est libérée. Quand elle a tourné d'un angle θ, E_2 ouvre K_2. La bobine d'aimantation a donc été alimentée pendant la rotation θ de la roue. Le dispositif permet de faire varier θ de 1° à 360°, soit la durée d'aimantation de 0,025 s. à 0,5 s. environ. Pour des temps plus longs, il suffit d'ouvrir et de fermer le circuit à la main.

De l'équation du mouvement de la roue, on tire facilement t en fonction de θ.

Les temps ont été également mesurés avec un fluxmètre par la méthode décrite par E. Darmois et G. Ribaud (36).

Pour que les circonstances de l'aimantation soient bien définies, il faut que la durée d'établissement et de coupure du champ soit petite par rapport à t. Pour nous en assurer, nous avons étudié l'allure du phénomène à l'oscillographe. Une série de photographies nous a montré que l'impulsion envoyée dans la bobine était rectangulaire même pour les temps les plus courts.

Il est nécessaire aussi de connaître les conditions d'établissement du champ à l'intérieur de l'échantillon. Le calcul se fait aisément en

partant des équations de Maxwell. Pour des échantillons parallélépipédiques (dimensions l, m, n), on trouve que la constante de temps du fondamental est :

$$\tau = \frac{4\mu\gamma m^2 n^2}{(m^2 + n^2)} \qquad \begin{array}{l} \mu : \text{perméabilité} \\ \gamma : \text{conductibilité.} \end{array}$$

Pour tous nos échantillons d'alnico ou de poudre de fer $m = 1$ cm., $n = 2{,}4$ cm), μ est de l'ordre de 4 et γ [1] de l'ordre de 10^{-4} u. e. m., ce qui donne : τ de l'ordre de 1/2 000 s.

Pour les échantillons de ferrite, la résistivité est beaucoup plus grande et les constantes de temps beaucoup plus petites.

Les aimantations ont été mesurées à l'appareil d'induction deux minutes après la coupure du courant. Nous avons trouvé que la loi logarithmique était vérifiée jusqu'à 0,025 s. pour les substances que nous avons étudiées : alnico, ferro-cobalt, poudre de fer... Sur la figure 14 nous avons porté les résultats concernant une poudre de fer ($H_c = 455$ œ) : $\sqrt{J_r}$ est exprimé en unités arbitraires.

b) *Mesures dans les temps longs.* — Pour suivre l'évolution de l'aimantation rémanente au cours de temps longs, il est important de préserver l'échantillon des variations de température et des vibrations ou des chocs. Nous l'avons conservé dans un vase Dewar rempli

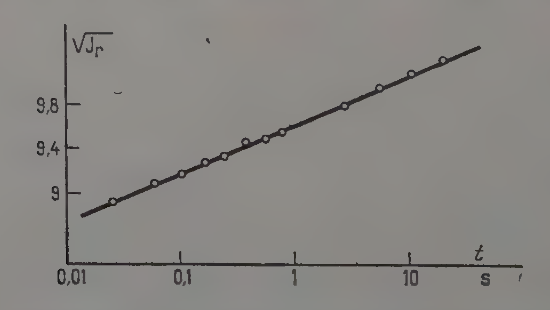


Fig. 14. — Traînage de l'aimantation rémanente dans les temps courts.

d'huile placé dans un local où les variations de température n'ont pas dépassé 5 degrés pendant la période de nos observations. Nous avons parallélement vérifié que l'influence de ces écarts de température sur l'aimantation est négligeable par rapport à celle du traînage. Les perturbations mécaniques légères, inévitables malgré les précautions prises sont également sans conséquence quand il s'agit de substances magnétiquement dures.

(1) Les valeurs de γ pour différents échantillons nous ont été obligeamment communiquées par L. Weil.

Nous avons prolongé la durée des expériences jusqu'à 4.10^6 s. environ. On remarque alors des écarts par rapport à la loi logarithmique. La diminution d'aimantation observée est inférieure à celle donnée par la formule 15 dans laquelle S_v est déduit des mesures de la variation de la rémanente entre 1 mn et 15 mn.

Pour un alnico par exemple nous avons observé une diminution de $\sqrt{J_r}$ inférieure de 8 o/o à la valeur fournie par l'extrapolation de la droite initiale. Pour une poudre de fer nous avons trouvé un écart de 5 o/o pour $t' = 4,1.10^6$ s., pour un autre alnico un écart de 6 o/o pour $t' = 2,3.10^6$ s. Ces écarts étaient prévisibles, puisque $\sqrt{J_r}$ doit nécessairement varier en suivant le tracé de la courbe *a* de la figure 15 et non celui de la courbe *b*.

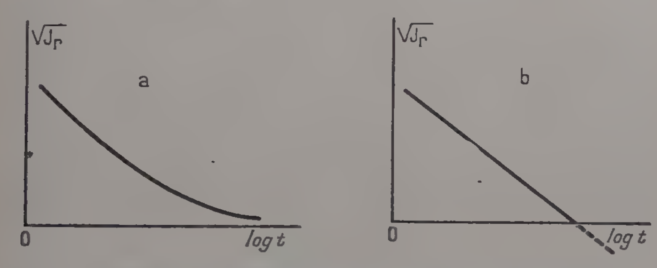


Fig. 15. — Traînage dans les temps longs.
a : variation prévisible ; *b* : variation impossible.

Une interprétation peut en être donnée en remarquant qu'en toute rigueur, dans la formule 15 il faut considérer S_v comme variable et prendre la moyenne relative à toutes les valeurs possibles de v.

Désignons par S la valeur moyenne $\overline{S_v}$ de S_v et par S'^2 le carré moyen $\overline{S_v^2}$.

En développant la formule 15 et en extrayant la racine carrée, il vient :

$$\sqrt{J_r} = \sqrt{\frac{b}{2}}\left[h + S(\log t - \log t') + \frac{S'^2 - S^2}{2h}(\log t - \log t')^2 + \dots\right] \quad (22)$$

La représentation rectiligne consiste à se limiter aux deux premiers termes du développement. Pour juger de l'importance des termes correctifs il faudrait connaître la distribution des volumes v. Soit $f(S_v)dS_v$ le nombre de volumes v, auxquels correspondent des valeurs de S_v comprises entre S_v et $S_v + dS_v$. Pour avoir un ordre de grandeur faisons l'hypothèse simple de la distribution rectangulaire.

$$f(S_v) = p = \text{constante pour } 0 < S_v < S_0.$$
$$f(S_v) = 0 \qquad \text{pour} \qquad S_0 < S_v.$$

On trouve alors :

$$\frac{S' - S}{S'} = \frac{\frac{1}{\sqrt{3}} - \frac{1}{2}}{\frac{1}{\sqrt{3}}} = 0{,}134.$$

Pour le premier alnico cité, le troisième terme du développement fournit alors une correction de 5 o/o. La différence entre S et S′ semble donc apporter une explication plausible aux écarts signalés. En outre, la formule 22 montre que la variation de $\sqrt{J_r}$ est d'autant plus linéaire que h est plus grand : c'est bien ce qu'atteste l'expérience.

K. Kronenberg a eu l'obligeance de nous communiquer certains résultats inédits sur des études de la variation de l'aimantation rémanente apparente après saturation. Avec une précision relative de 0,01 o/o, il a suivi l'évolution de la rémanente pendant près de 10 000 heures soit plus d'un an, sur des échantillons d'œrstite et de tromalite sans noter d'écart par rapport à la loi de variation logarithmique.

D'après ce que nous avons énoncé au début de ce paragraphe, tous ces résultats confirment que le spectre des constantes de temps relatives au traînage irréversible est très étalé. La poursuite des expériences pendant plus d'un an n'apporterait pas beaucoup de renseignements supplémentaires. Il paraît plus intéressant de rechercher les limites de validité de la loi logarithmique vers les temps courts. Mais on se heurte alors à des difficultés, telles que la présence des courants induits par exemple. Dans le chapitre sur l'étude du traînage dans les champs variables, nous parlerons des moyens utilisables pour la recherche des limites du traînage vers les temps courts.

14. Variation de S_v en fonction de la température. — Pour préciser le caractère du traînage de fluctuation, il est utile de reprendre, à différentes températures, les expériences faites à la température ambiante. Nous avons surtout recherché comment évoluait le traînage à des températures inférieures à la température ordinaire. Les déterminations de S_v ont été faites à partir des mesures de la variation de l'aimantation rémanente en fonction de log t' à température constante. L'état initial a toujours été défini par une désaimantation à la température de mesure.

Les installations du laboratoire nous ont permis de faire des mesures entre la température ambiante et celle de l'hydrogène liquide grâce au liquéfacteur d'hydrogène construit par A. Lacaze (35) sous la direction de M. le Professeur L. Weil. Pour déterminer le champ réel d'aimantation à chaque température, il faut calculer le champ démagnétisant et, pour cela, connaître les coefficients a_0 et b des lois

de Rayleigh. Nous avons vérifié pour l'alnico, qu'entre la température de l'azote liquide et la température ambiante, ces coeficients varient peu et que par suite les variations du champ réel d'aimantation pour un même champ appliqué sont négligeables entre ces deux températures.

Sur la figure 16 nous avons porté S_v en ordonnée et la température absolue T en abscisse, valeurs obtenues avec un échantillon d'alnico. La courbe tracée représente les variations de la fonction : $S_v = K.T^{3/4}$, K étant déterminé par la valeur de S_v déduite des expériences à 290° K. Les points expérimentaux se placent assez correctement sur cette courbe.

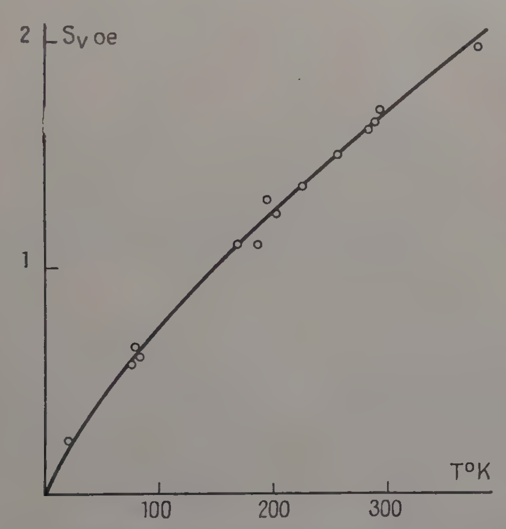


Fig. 16. — Constante de traînage en fonction de la température.

La théorie proposée par L. Néel établit que S_v doit être proportionnel à la racine carrée de la température absolue, si l'on suppose que les volumes v des discontinuités Barkhausen restent constants (cf. paragraphe 3). Or ces volumes varient certainement en fonction de la température, mais on ne possède aucune donnée sur la variation de v en fonction de T pour les substances du genre alnico. Il est probable que ces volumes décroissent quand la température augmente. Puisque S_v est proportionnel à $v^{-1/2}$, il semble plausible que la loi en $T^{3/4}$ soit une conséquence de la variation de ces volumes.

D'autres auteurs ont étudié le traînage irréversible en fonction de la température. Mais leurs mesures ont été effectuées au voisinage du point coercitif. Les expériences de P. Courvoisier (15) aux tempéra-

tures 193° K, 288° K, 368° K, montrent que pour un acier S_v varie proportionnellement à T. Pour un alnico R. Street et J. C. Woolley trouvent que le produit de S_v par la susceptibilité différentielle irréversible varie aussi proportionnellement à T entre 90° K et 500° K environ. Récemment (39) ils ont déterminé les valeurs de S_v en fonction de T, mais il ne semble pas que les points expérimentaux qu'ils ont obtenus aux basses températures soient plus en accord avec une loi en K.T qu'avec une loi en $KT^{3/4}$.

La question n'est donc pas définitivement éclaircie. Nous y reviendrons dans le chapitre sur le traînage dans les champs variables.

DEUXIÈME PARTIE

LE TRAINAGE MAGNÉTIQUE EN DEHORS DU DOMAINE DE RAYLEIGH

15. But de ce chapitre. — Au cours du chapitre précédent, nous avons établi que dans le domaine de Rayleigh les résultats expérimentaux se résumaient en formules simples et étaient en accord avec l'hypothèse fondamentale d'un champ fictif de traînage. Dans le présent chapitre nous étendons notre étude en dehors du domaine de Rayleigh.

La théorie du champ fluctuant montre qu'au voisinage du point coercitif le traînage prend une grande importance relative. En effet, l'aimantation totale est voisine de zéro et, simultanément, la susceptibilité différentielle irréversible passe par un maximum. C'est la raison pour laquelle, si le traînage irréversible n'a pas été décrit jusqu'ici dans les champs faibles, il a cependant été observé par plusieurs auteurs au voisinage du champ coercitif. Si la généralité du phénomène leur a échappé, c'est sans doute en raison de la sensibilité insuffisante de l'appareillage utilisé.

Parmi les travaux les plus importants, on peut citer ceux de P. Courvoisier (15) et ceux de R. Street et J. C. Woolley (18, 19). P. Courvoisier a observé et analysé le traînage d'un acier au voisinage du point coercitif. Il en attribue l'origine à l'agitation thermique qui permet aux parois de franchir des barrières de potentiel, infranchissables en son absence sous la seule influence du champ magnétisant. On retrouve des idées voisines dans l'étude de R. Street et J. C. Woolley poursuivie sur un alnico, au voisinage du point coercitif.

Bon nombre de résultats de ces auteurs et ceux que nous présentons dans ce chapitre s'inscrivent dans la théorie du traînage de fluctuation de L. Néel (17).

16. Influence du champ démagnétisant sur le traînage. — La variation ΔJ d'aimantation liée au traînage s'écrit d'après les formules 2 et 7 :

$$\Delta J = c \cdot S_v(Q + \log t) \qquad (23)$$

où c est la susceptibilité irréversible et $S_v(Q + \log t)$ le champ fictif de traînage. La détermination de S_v exige de connaître simultanément c et la variation d'aimantation dans un intervalle de temps donné.

Considérons, sans nous occuper de son histoire magnétique, un échantillon idéal ayant un coefficient de champ démagnétisant nul et faisons varier le champ appliqué (égal au champ interne). Les valeurs de l'aimantation observée aussitôt après la variation du champ sont représentées sur la courbe 1 de la figure 17 ; les valeurs de l'aimantation, observées un intervalle de temps t constant après chaque variation de champ, sont reportées sur la courbe 2.

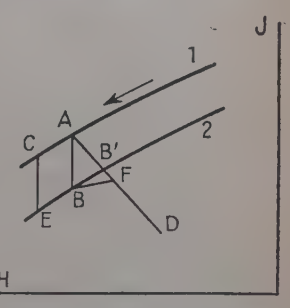


Fig. 17. — Rôle du coefficient de champ démagnétisant dans les variations d'aimantation.

Soit A le point représentatif de l'état de l'échantillon instantanément après une variation du champ dans le sens indiqué par la flèche. Si on maintient le champ constant, ce point se déplacera dans le temps suivant une parallèle AB à l'axe des aimantations. L'ordonnée de B figure l'aimantation mesurée à l'instant t ; la distance AB la variation d'aimantation due au traînage ΔJ donnée par la formule 23.

Soit maintenant un échantillon dont le coefficient de champ démagnétisant N n'est pas nul. Une variation $\Delta J'$ d'aimantation est accompagnée d'une variation $-N\Delta J'$ du champ appliqué. La variation $\Delta J'$ liée au traînage est plus petite que ΔJ (tirée de (23)). Pour en donner une valeur approchée, supposons provisoirement que la forme de (23) soit conservée et que l'on puisse écrire simplement :

$$\Delta J' = \lambda . c . S_v(Q + \log t). \qquad (24)$$

Il s'agit de déterminer λ.

Remarquons d'abord que $\Delta J'$ est la somme de la variation $\Delta J''$ provoquée par les retournements irréversibles dus au traînage et d'une variation réversible due à la variation de champ et égale à $-a.N.\Delta J'$ où a est la susceptibilité réversible. On a donc :

$$\Delta J'' = \Delta J'(1 + a.N). \qquad (25)$$

Cette variation irréversible $\Delta J''$ est elle-même provoquée par un champ

variable, dont la partie variable pendant la durée du traînage est égale à $-\mathrm{N}.\Delta\mathrm{J}'$.

Pour calculer le champ fictif total agissant sur la partie du système dont l'aimantation varie d'une manière irréversible, il faut alors appliquer la formule 25 du mémoire de L. Néel (17) sous la forme :

$$h' = \mathrm{S}_v\left(\mathrm{Q} + \log \int_0^t e^{h/\mathrm{S}_v} dt\right) \tag{26}$$

qui, lorsque h est constant donne :

$$h' = h + \mathrm{S}_v(\mathrm{Q} + \log t).$$

Ici il faut remplacer h dans (26) par $h - \mathrm{N}.\Delta\mathrm{J}'$:

$$h' = \mathrm{S}_v\left\{\mathrm{Q} + \log \int_0^t \exp.\left[\frac{h}{\mathrm{S}_v} - \lambda.\mathrm{N}.c(\mathrm{Q} + \log t)\right] dt\right\}.$$

On intègre en posant $u = \log t$ et en admettant que $1 - \lambda.\mathrm{N}.c$ est positif comme cela sera vérifié plus loin, on trouve :

$$h' = h + \mathrm{S}_v[(\mathrm{Q} + \log t)(1 - \lambda.\mathrm{N}.c) - \log(1 - \lambda.\mathrm{N}.c)].$$

La variation d'aimantation due au traînage est donc :

$$c.\mathrm{S}_v[(\mathrm{Q} + \log t)(1 - \lambda.\mathrm{N}.c) - \log(1 - \lambda.\mathrm{N}.c)].$$

Elle doit être identiquement égale à $\Delta\mathrm{J}''$ ce qui donne finalement, compte tenu de (25) :

$$\lambda = \frac{1}{1 + (a + c)\mathrm{N}}\left[1 - \frac{\log(1 - \lambda.\mathrm{N}.c)}{\mathrm{Q} + \log t}\right]. \tag{27}$$

En première approximation nous pouvons remplacer dans le logarithme λ par sa valeur approchée : $\frac{1}{1 + (a + c)\mathrm{N}}$ et négliger $\log t$ devant Q. (27) devient ainsi :

$$\lambda = \frac{1}{1 + (a + c)\mathrm{N}}\left[1 - \frac{1}{\mathrm{Q}} \log \frac{1 + a.\mathrm{N}}{1 + (a + c)\mathrm{N}}\right]. \tag{28}$$

Quand a est grand vis-à-vis de c on obtient simplement :

$$\lambda = \frac{1}{1 + (a + c)\mathrm{N}}. \tag{29}$$

De toutes façons, comme Q est assez grand (Q est de l'ordre de 50), le terme $\frac{1}{\mathrm{Q}} \log \frac{1 + a.\mathrm{N}}{1 + (a + c)\mathrm{N}}$ doit toujours être négligeable devant l'unité, de sorte que λ est toujours donné par (29).

D'après (24) la variation d'aimantation due au traînage est donc :

$$\Delta\mathrm{J}' = \frac{c.\mathrm{S}_v(\mathrm{Q} + \log t)}{1 + (a + c)\mathrm{N}}. \tag{30}$$

Le point représentatif de l'état magnétique d'un échantillon, dont le coefficient de champ démagnétisant N n'est pas nul, initialement en A (fig. 17), ne se déplace plus suivant une droite parallèle à l'axe des coordonnées mais suivant une droite AD de pente N. A l'instant t il est en B' et l'on a d'après (30) :

$$J_A - J_{B'} = \Delta J' = \frac{1}{1 + (a + c)N}(J_A - J_B). \qquad (31)$$

En admettant qu'aux trois points voisins A, B, B', la susceptibilité différentielle totale $(a + c)$ est la même, cette relation traduit que B' est sur la courbe 2. Au bout du temps t les points représentatifs (J, H) sont donc sur une même courbe 2 quel que soit N.

Pour des échantillons d'une même substance mais de formes diverses, initialement dans le même état, la variation d'aimantation due au traînage sera d'autant plus faible que le coefficient de champ démagnétisant sera plus grand.

L'équation 30 peut s'écrire sous la forme :

$$\frac{1}{\Delta J_{1,2}} = \frac{1}{c.Sv.\log\frac{t_1}{t_2}}[1 + (a + c)N]. \qquad (32)$$

$\Delta J_{1,2}$ désigne la variation d'aimantation entre deux instants t_1 et t_2. R. Street et J. C. Woolley (39) ont trouvé que, dans la limite des erreurs expérimentales, l'inverse de $\Delta J_{1,2}$ est une fonction linéaire de N pour différents échantillons du même alnico, dont les coefficients de champ démagnétisant sont compris entre 0,196 et 1,07, ce qui est en accord avec la formule 32. Leur théorie mettant en jeu des énergies d'activation les a d'ailleurs conduits à une formule analogue.

17. Détermination de S_v en différents points du domaine d'hystérésis. — Des processus différents peuvent conduire une substance à prendre une même aimantation donnée J dans un champ donné H. Si à chaque histoire magnétique correspond, comme l'a montré R. Gans (32), à peu près la même valeur de la susceptibilité différentielle réversible, par contre la susceptibilité irréversible varie beaucoup en fonction du processus suivi. Nous avons utilisé cette propriété pour préciser les liens entre les variations d'aimantation dues au traînage et la susceptibilité irréversible et pour établir l'indépendance du traînage et de la susceptibilité réversible.

Les susceptibilités différentielles ont été définies dans le paragraphe 3, mais dans la détermination expérimentale de ces susceptibilités, il faut tenir compte des effets perturbateurs du traînage.

Reprenons les courbes 1 et 2 de la figure 17. La susceptibilité totale en A est la pente de la courbe 1 en A, et aussi, en première approximation, la pente de la courbe 2 en B. En partant d'un état initial bien défini et en suivant un parcours déterminé, on arrive en A dans le

champ H à l'instant zéro ; on mesure l'aimantation en B à l'instant t. En partant du même état initial, on suit le même parcours et on le prolonge de manière à atteindre C sur la courbe 1 dans le champ $H + \Delta H$ à l'instant zéro ; après une même durée t que précédemment, on mesure l'aimantation en E. La susceptibilité différentielle totale est donnée par :

$$a + c = \frac{J_B - J_E}{\Delta H}.$$

L'expérience montre que $(a + c)$ est indépendant du terme ΔH, si celui-ci est faible.

Pour calculer c, il suffit de connaître a.

Revenons en B par le processus décrit précédemment. Au bout d'un temps t, choisi assez grand pour que les phénomènes dûs au traînage soient devenus négligeables, nous diminuons le champ de ΔH et nous mesurons l'aimantation, figurée en F, au temps t' ($t' - t$ très faible par rapport à t). Dans ces conditions on a :

$$a = \frac{J_F - J_B}{\Delta H}.$$

Dans le paragraphe 8 nous avons étudié le traînage d'aimantations rémanentes faibles, obtenues par application puis suppression d'un champ magnétisant h, petit par rapport au champ coercitif (fig. 18, parcours OAB). La même aimantation rémanente peut résulter d'un processus différent : parcours OA'B'C'D'B. Tandis qu'après le parcours OAB on observe une diminution de l'aimantation rémanente en fonction du temps, après le parcours OA'B'C'D'B on observe une augmentation. Ce résultat est conforme à la théorie, selon laquelle la variation d'aimantation due au traînage doit se produire dans le même sens que celle produite par la dernière modification du champ avant l'observation du traînage.

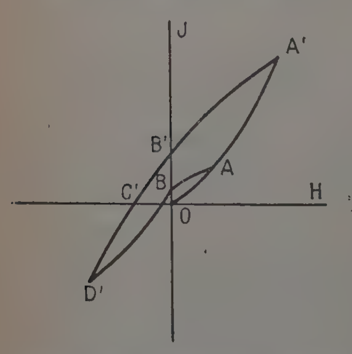


Fig. 18. — Différents processus d'acquisition d'une même aimantation rémanente.

Nous avons comparé, sur un même alnico, des expériences du type OAB et des expériences du type OA'B'C'D'B.

Parcours OAB : quand h varie de 20 œ à 100 œ, c varie de 0,004 à 0,02 tandis que S_v reste constant et égal à 1,65 œ.

Parcours OA'B'C'D'B : les résultats sont consignés dans le tableau ci-après :

c	0,055	0,10	0,13	0,19
S_v	1,70	1,80	2,05	2,20

Nous avons fait ensuite des mesures pour des aimantations faibles dans des champs non nuls (voisinage de C′ sur le parcours OA′C′). Voici les résultats concernant un échantillon de magnétite :

H	0	121,6	161,4	202,6
c	0,012	0,25	0,31	0,38
S_v	4,40	4,20	4,10	4,45

Pour l'alnico déjà cité, nous avons marqué sur la figure 19 les valeurs de S_v aux différents points du plan (J, H) où nous avons mesuré le traînage.

Sur des échantillons d'œrstite, obligeamment prêtés par K. Kronenberg, nous avons pu comparer les valeurs de S_v correspondant à des aimantations très différentes. Comme nous l'avons déjà signalé (paragraphe 13) cet auteur a trouvé que l'aimantation rémanente apparente après saturation diminuait proportionnellement à log t' (61). De ses résultats, après avoir mesuré c,

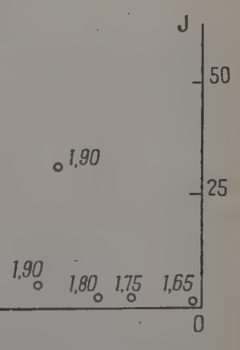


Fig. 19. — Constante de traînage en différents points du domaine d'hystérésis.

nous avons déduit S_v. Sur les mêmes échantillons nous avons aussi déterminé S_v dans le domaine de Rayleigh, pour des aimantations mille fois plus faibles et des valeurs de c de vingt à quarante fois plus faibles. Les variations corrélatives de S_v étaient seulement de 20 o/o à 30 o/o.

De récents travaux de R. Street et J. C. Woolley (39) sont, depuis peu, venus appuyer les nôtres. Sur un échantillon d'alnico, ils ont fait des mesures de S_v en différents points du cycle d'hystérésis limite, dans des champs allant de 100 œ à 400 œ environ, c variant de 2,5 à 10 environ. Ils ont trouvé pour S_v des valeurs sensiblement indépendantes du point de la mesure, comprises entre 1,65 et 1,86 œ.

De tous ces résultats il ressort que, pour une substance donnée, magnétiquement dure, S_v reste sensiblement constant quelles que soient les variations de champ, d'aimantation et de susceptibilité différentielle irréversible. La simplicité de ces résultats corrobore l'hypothèse fondamentale de l'existence d'un champ magnétique interne fluctuant s'ajoutant au champ appliqué.

Selon la théorie S_v doit être inversement proportionnel à la racine carrée du volume des discontinuités de Barkhausen. Les résultats obtenus semblent montrer que, pour les substances magnétiquement dures, le volume de ces discontinuités varie peu dans tout le domaine d'hystérésis. Pour des substances magnétiquement plus douces, on peut s'attendre à des variations plus grandes des volumes v et par suite à des variations plus grandes de S_v.

18. Généralité du traînage de fluctuation. — Le fait que S_v, sans rester rigoureusement constant, garde pour une même substance sensiblement la même valeur dans tout le domaine d'hystérésis justifie l'intérêt de la détermination de cette grandeur. Elle permet de caractériser le traînage et de fixer l'ordre de grandeur du phénomène.

Si, comme le laisse supposer l'accord entre la théorie et les résultats expérimentaux, l'agitation thermique est à l'origine du traînage irréversible, on doit l'observer dans toutes les substances ferromagnétiques. Les lois en étant bien précisées, nous avons essayé de les vérifier sur des substances très diverses : sur les substances magnétiquement dures au magnétomètre ou à l'appareil d'induction ; sur les substances douces, étudiées sous la forme de tores pour éviter les effets d'un trop grand champ démagnétisant, par le procédé indirect décrit au paragraphe 12.

Sur tous les échantillons éprouvés, nous avons observé du traînage magnétique et pu déterminer une valeur de S_v. Le traînage de fluctuation paraît donc bien être général, et c'est là un de ses caractères fondamentaux qui le différencie notamment du traînage de diffusion. Sur la figure 20 nous avons porté les valeurs de S_v que nous avons déterminées pour différentes substances en fonction du champ coercitif. Nous avons également indiqué des valeurs tirées des mesures de P. Courvoisier sur un acier dur, de L. Lliboutry sur des aciers et de R. Street et J. C. Woolley sur un alnico. S_v est à peu près proportionnel au champ coercitif, mais ce n'est là qu'une approximation assez grossière.

Dans sa théorie L. Néel a établi que les valeurs de S_v pouvaient s'échelonner en première approximation, à la température ordinaire, entre 0,002 œ pour les substances douces et 2 œ pour les substances du genre alnico. C'est bien l'ordre de grandeur fourni par l'expérience. R. Street, J. C. Woolley et P. B. Smith (38) ont fait subir à un alnico différents traitements thermiques et ont étudié leur influence sur le traînage. Ils ont représenté, en fonction du champ coercitif, le produit de S_v par la susceptibilité irréversible au point coercitif. Ne pouvant déduire S_v de leurs résultats, il ne nous est pas possible de tirer de conclusion de leur étude quant aux facteurs qui influent sur S_v.

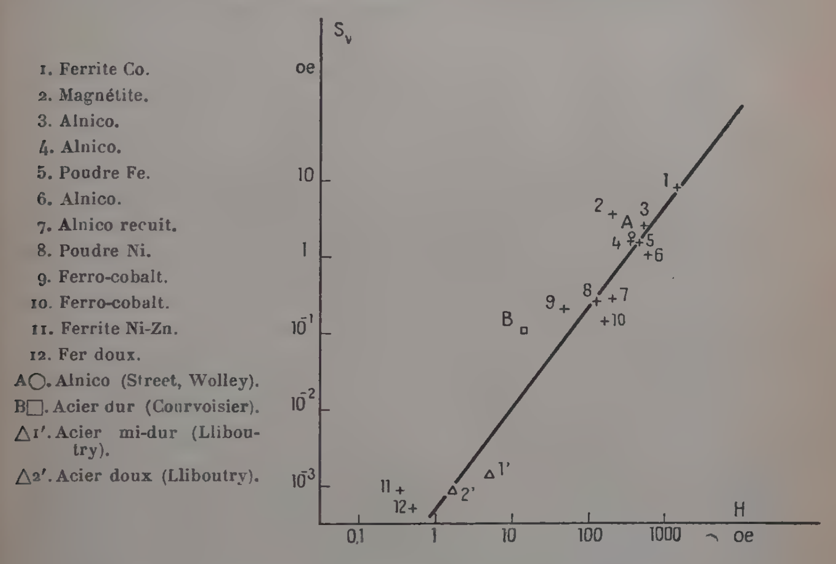


Fig. 20. — Constantes de traînage pour différents échantillons.

TROISIÈME PARTIE

EFFET DES RECUITS, DES CHAMPS ALTERNATIFS ET DES COMPRESSIONS SUR L'AIMANTATION RÉMANENTE

19. Effet des recuits sur l'aimantation rémanente. — Depuis longtemps le procédé de stabilisation des aimants permanents par un léger recuit est utilisé empiriquement. Nous avons recherché comment

ces recuits agissent sur l'aimantation rémanente. Un échantillon ayant acquis une aimantation rémanente J_r, à la suite de l'application d'un champ H, faible vis-à-vis du champ coercitif, nous avons étudié l'influence d'un recuit à une température T, suivi éventuellement d'un retour à la température $T_0 (T > T_0)$. Nous avons obtenu, en opérant des recuits à des températures croissantes T_1, T_2, ... etc., une diminution de la racine carrée $\sqrt{J_r}$ de l'aimantation rémanente proportionnelle à $T - T_0$. Les mesures pour différents champs magnétisants H montrent que la constante de proportionnalité est indépendants de H, si bien que l'on obtient des droites parallèles en représentant $\sqrt{J_r}$ en fonction de $T - T_0$, comme en témoigne la figure 21 concernant un alnico. L'observation du phénomène au magnétomètre permet de suivre l'évolution de l'aimantation rémanente ; on constate que la variation d'aimantation se produit pendant l'échauffement de T_0 à T et pendant le séjour à T ; pendant le refroidissement de T à T_0 l'aimantation ne change plus. De même elle n'est pas modifiée par un recuit ultérieur à une température comprise entre T_0 et T.

Après un recuit à la température T, la substance ne présente plus de traînage à la température T_0 : J_r ne dépend plus du temps pourvu que $\Delta T = T - T_0$ ait atteint au moins 20 à 30 degrés. Les écarts entre

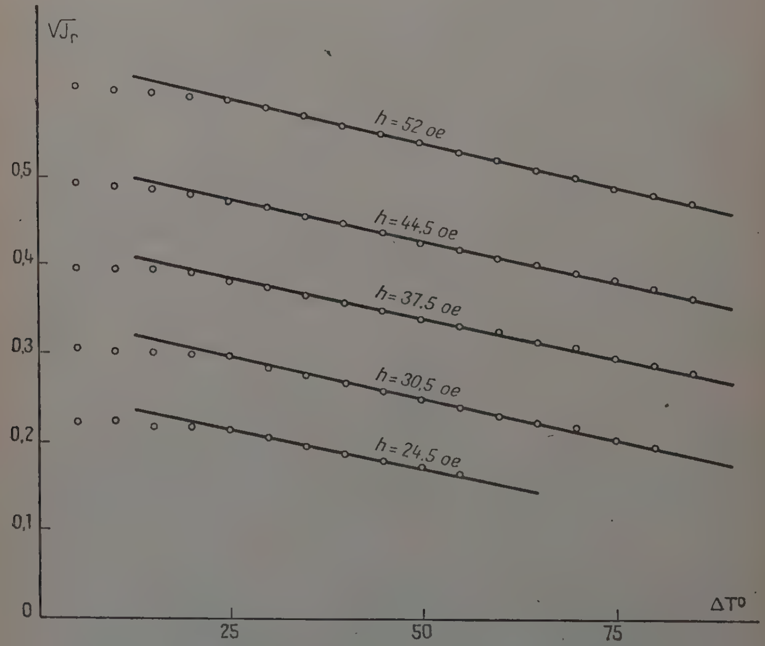


Fig. 21. — Effet des recuits sur l'aimantation rémanente.

les points expérimentaux et les droites visibles sur la figure 21, proviennent sans doute de ce que le traînage magnétique a effacé dans le temps la fraction de l'aimantation rémanente qui aurait dû disparaître à la suite d'une faible élévation de température.

Ces phénomènes peuvent s'expliquer grâce à la théorie du traînage de fluctuation. L'élévation de température est équivalente à une augmentation du champ fluctuant de traînage et l'effet qu'elle entraîne peut se traduire dans le domaine de Rayleigh par une formule analogue à celle qui donne la variation de la rémanente en fonction du temps. Si H est le champ appliqué pendant une durée t à la température T_0, t' la durée du chauffage à une température $T > T_0$ dans un champ nul, et J'_r l'aimantation mesurée à la température T_0 au bout d'une durée t'' après le retour à T_0, on a :

$$J'_r = \frac{b}{2}[H + H_i(t, T_0) - H_i(t', T)]^2 \qquad (33)$$

aussi longtemps que $H_i(t'', T_0)$ reste inférieur à $H_i(t', T)$.

En développant (33), compte tenu des équations 2, 3 et 4 :

$$\frac{\partial\sqrt{J'_r}}{\partial T} = \sqrt{\frac{b}{2}}\frac{S_v}{T_0}\left(Q' + \frac{1}{2}\log t'\right) \qquad (34)$$

Cette formule est en accord avec les caractéristiques du phénomène que nous avons données. L'étude, sur un même échantillon, de la diminution de la rémanence par traînage et par élévation de température permet de déterminer expérimentalement Q'. Les résultats portés sur la figure 21 indiquent que Q' ne dépend pas de H. Nous avons trouvé aussi, pour le même corps, aux températures $T_0 = 293°$ K et $T_0 = 191°$ K la même valeur de Q' tandis que S_v variait d'environ 25 o/o.

Dans sa théorie L. Néel a établi que Q' devait varier relativement peu d'une substance à l'autre et que la valeur de cette constante devait être voisine de 20. Les mesures sur des substances variées ont montré qu'il est possible de les classer en deux catégories :

— une catégorie A qui comprend les substances magnétiquement dures : alnico, poudre de fer comprimée... etc, et pour lesquelles les valeurs de Q' sont comprises entre 23 et 30, soit l'ordre de grandeur prévu par la théorie ;

— une catégorie B groupe les corps à champ coercitif plus petit ; les valeurs de Q' sont beaucoup plus grandes : 57 pour un alnico recuit de $H_c = 200$ œ et 120 pour un fer-cobalt de $H_c = 155$ œ. Corrélativement la théorie prévoit qu'une substance ayant été aimantée à la température T_0, une diminution de température ne doit produire aucune variation de l'aimantation rémanente J_r. L'expérience montre que, pour les substances de la catégorie A, l'effet d'un refroidissement est très faible ou même complètement négligeable. Mais pour les substances de la catégorie B, il se produit une diminution de J_r par

refroidissement. Il semble donc qu'un mécanisme parasite, étranger aux fluctuations thermiques, vienne diminuer l'aimantation rémanente quand on modifie la température aussi bien dans un sens que dans l'autre. Ceci expliquerait les valeurs anormalement grandes de Q'. Le mécanisme pourrait être envisagé comme une redistribution des domaines élémentaires.

D'après l'équivalence établie entre un recuit à la température T pendant une durée t' et le maintien à la température T_0 pendant une durée t, on pourrait s'attendre à ce que, après le retour à T_0, à la suite de l'élévation de température $\Delta T = T - T_0$, le traînage ne se manifeste plus pendant une durée t'' telle que :

$$H_i(t'', T_0) = H_i(t', T).$$

L'expérience montre cependant que si ΔT a été assez faible, le traînage se manifeste toujours après retour à T_0, mais avec une intensité plus faible. Ceci peut s'interpréter, comme précédemment, en supposant que l'élévation de température ΔT a provoqué une redistribution des domaines élémentaires, qui a soustrait certains d'entre eux à l'effet du traînage à la température T, alors que normalement ils auraient dû être affectés par lui. L'étude quantitative de ce phénomène est délicate ; lorsque le traînage devient faible il est difficile à mesurer et l'élévation de température ΔT ne se produit pas instantanément, ce qui entraîne une indétermination dans le calcul de t'.

Les résultats précédents ont été discutés par rapport à la formule 34 établie d'après la théorie en supposant que la variation de S_v en fonction de la température était proportionnelle à $T^{1/2}$. Mais dans le calcul de cette formule, nous n'avons pas tenu compte des variations éventuelles des volumes des discontinuités de Barkhausen en fonction de la température. Si nous admettons qu'en faisant intervenir ces variations de volume, S_v est proportionnelle à $T^{3/4}$ comme le suggèrent les résultats obtenus avec un alnico, le calcul conduit alors à l'expression :

$$\frac{\partial\sqrt{J'_r}}{\partial T} = 1{,}5\sqrt{\frac{b}{2}}\frac{S_v}{T_0}\left(Q' + \frac{1}{2}\log t'\right). \qquad (35)$$

Pour cet alnico, la valeur de Q' calculée au moyen de (34) était voisine de 30 ; en appliquant (35), on obtient pour Q' une valeur voisine de 20, plus en accord avec la théorie.

Signalons un autre phénomène se rattachant aux études thermiques précédentes : le blocage du traînage à basse température. Une substance, aimantée pendant une durée t à la température T_0 dans le champ H, subit un traînage de la rémanence. Si on la refroidit rapidement à la température de l'air liquide et si on la maintient à cette température, le traînage ne se manifeste plus pendant tout le séjour à basse température. Après retour à la température T_0 le traînage

réapparaît. Nous avons vérifié sur un alnico qu'à la suite d'un séjour de 24 heures à la température de l'air liquide, après retour à T_0, le traînage réapparaît avec la même intensité qu'avant le refroidissement.

20. Effet d'un champ alternatif décroissant sur l'aimantation rémanente. — Un autre procédé permet de stabiliser l'aimantation rémanente acquise par un ferromagnétique : on applique à la substance un faible champ alternatif $h_0 \sin \omega t$, décroissant lentement depuis la valeur initiale h_0 jusqu'à zéro. Si l'amplitude maximum h_0 de ce champ est suffisante, l'aimantation rémanente devient indépendante de l'époque de l'observation. Le champ alternatif a joué le rôle du champ fluctuant de traînage. L'aimantation rémanente J_r'' qui subsiste après ce traitement se calcule, comme pour l'effet des recuits, d'après la formule 31 du mémoire de L. Néel (17) :

$$J_r'' = \frac{b}{2}[h + H_i(t, T_0) - h_0 - H_i(\tau, T_0)]^2 \qquad (36)$$

τ est un temps de l'ordre de $1/\omega$.

L'équation 36 se développe sous la forme :

$$J_r = \frac{b}{2}\left(h - h_0 + S_v \log \frac{t}{\tau}\right)^2 \qquad (37)$$

Cette formule se prête bien à des vérifications expérimentales.

La variation du champ alternatif est commandée par la variation du niveau d'eau du rhéostat liquide décrit à propos des désaimantations.

Les résultats expérimentaux sont en bon accord avec la formule 37.

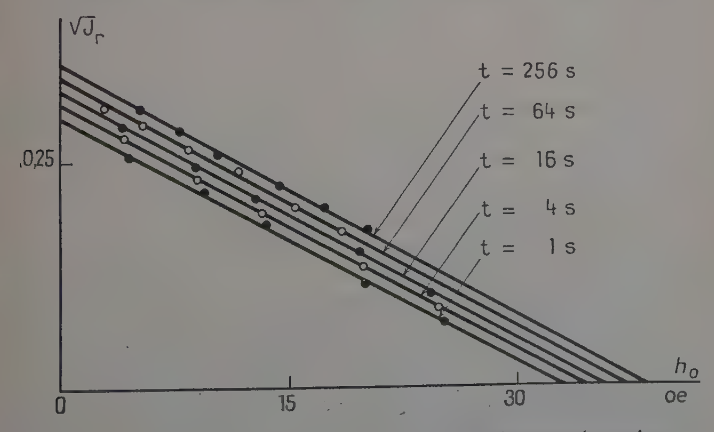


Fig. 22. — Effet des champs alternatifs sur l'aimantation rémanente.

Si l'on porte $\sqrt{J''_r}$ en fonction de h_0, les points sont correctement alignés. En faisant varier la valeur du paramètre t on obtient un réseau de droites parallèles (figure 22 pour une poudre de fer).

L'extrapolation de ces droites jusqu'à l'axe des abcisses fournit les valeurs H_0 du champ h_0 qu'il faut appliquer pour annuler l'aimantation rémanente. Les valeurs H_0 tirées de la figure 22 ont été portées

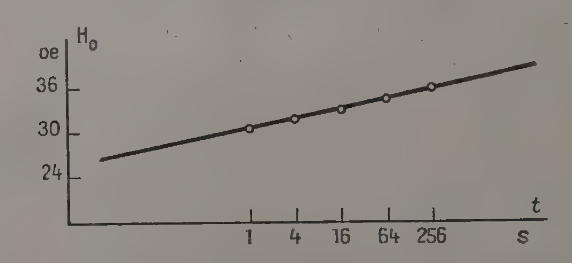


Fig. 23. — Champ alternatif nécessaire pour désaimanter en fonction de la durée d'aimantation.

sur la figure 23 en fonction de log t. Les points sont sensiblement alignés : ceci est en accord avec la formule 37 d'où l'on tire :

$$H_0 = h + S^v \log \frac{t}{\tau} \tag{38}$$

La pente de la droite $H_0(\log t)$ permet de calculer S_v et nous avons vérifié que la valeur trouvée par cette méthode était en accord avec celle déduite des mesures directes du traînage de la rémanente. La valeur de τ que donne l'extrapolation de la droite est voisine de 1/100 s., ordre de grandeur satisfaisant car nous avons opéré avec un champ alternatif à 50 p/s.

21. Effet des compressions sur l'aimantation rémanente. — Dans un récent mémoire W. F. Brown (40) a proposé un modèle théorique pour interpréter les effets des tensions sur l'aimantation acquise par un ferromagnétique, dans le domaine de Rayleigh, le long de la courbe de première aimantation.

Partant des mêmes bases, nous avons étudié l'effet d'une compression sur l'aimantation rémanente et nous avons comparé les résultats expérimentaux à la théorie.

W. Brown analyse d'abord le comportement d'un monocristal de fer ayant une orientation arbitraire par rapport à la direction d'application du champ ou de la tension. En supposant toutes les orientations également probables, il en déduit, par un calcul de moyenne, les résultats pour un polycristal.

L'application d'un champ magnétique ou d'une tension provoque un déplacement de la paroi de séparation de deux domaines élémentaires de Weiss. Champ magnétique et tension agissent sur la paroi comme une pression hydrostatique fictive, qui, dans le cas d'un champ H et d'une tension T appliqués suivant la même direction, a pour valeur :

$$p = HJ_s \cos (J, H) + \frac{3}{2} T\lambda_s \cos^2 (J, H) \qquad (39)$$

J_s est l'aimantation à saturation, λ_s la magnétostriction à saturation d'un cristal, supposé cubique, aimanté suivant [1,0,0]. W. F. Brown divise les parois en trois classes :

— la classe A comprend les parois à 90° qui, sous l'effet d'une tension, se déplacent dans le même sens que sous l'action d'un champ positif ;

— la classe C, les parois à 90° dont le déplacement provoqué par un champ positif est de sens opposé à celui dû à une tension ;

— la classe B, les parois à 180° : une tension est sans action sur elles car les pressions équivalentes de part et d'autre de la paroi se compensent.

L. Néel (30) a démontré que, sous l'action d'un champ magnétique, le déplacement d'une paroi isolée obéit à un mécanisme conforme aux lois de Rayleigh.

En nous basant sur ces données, nous avons sur la figure 24, illustré le comportement des trois classes de parois, en assimilant une tension à un champ fictif.

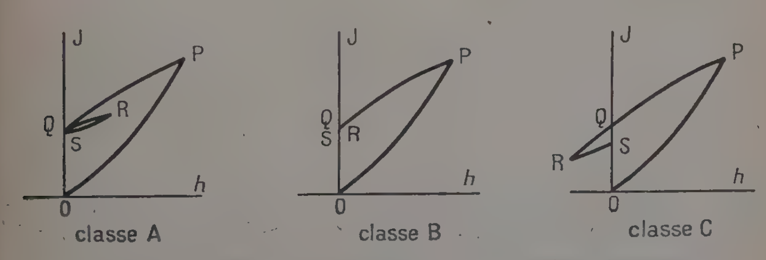


Fig. 24. — Effet des tensions sur l'aimantation rémanente pour les différents types de parois.

Le parcours OPQ représente la processus d'acquisition de l'aimantation rémanente par application puis suppression d'un champ magnétisant H ; le parcours QRS correspond à l'application (QR) et à la suppression (RS) d'une tension T. Seules les parois du type C interviennent dans le changement irréversible d'aimantation consécutif à l'application et à la suppression d'une tension. En supposant que les parois à 90° et à 180° contribuent également à l'aimantation et que

la surface totale des parois du type A est la même que celle des parois du type C, la variation d'aimantation rémanente prend la forme :

$$\Delta J_r = \frac{b}{4} H h_r \tag{40}$$

b est le coefficient de Rayleigh, h_T le champ fictif équivalent à la tension T.

Le calcul de Brown donne, pour une répartition isotrope des directions des axes des cristaux dans toute la substance :

$$h_T = 0,828.10^8 \frac{\lambda_s}{J_s} T \tag{41}$$

lorsque T est exprimé en kg./mm².

L'équation T peut encore s'écrire :

$$\Delta J_r = \gamma b H T \tag{42}$$

avec :

$$\gamma = 0,207.10^8 \frac{\lambda_s}{J_s}. \tag{43}$$

Dans son étude W. F. Brown n'a pas tenu compte des effets du traînage sur l'aimantation et nous les avons aussi négligés dans l'établissement des formules 40 et 42.

La théorie de L. Néel (17) permet la généralisation de ces formules en faisant intervenir le traînage de fluctuation.

Soit un échantillon ayant acquis une certaine aimantation rémanente à la suite de l'application d'un champ H pendant une durée t. Au bout d'un intervalle de temps t'_0 après la suppression de H, soumettons cet échantillon à l'action d'une tension T pendant une même durée t. Désignons par t' le temps écoulé depuis la suppression de H. Avant l'application de la tension ($t' < t'_0$), l'aimantation rémanente J_r est donnée par la formule 15, soit :

$$J_r = \frac{b}{2}(H + S_v \log t - S_v \log t')^2.$$

En assimilant la tension T à un champ fictif $+h_T$, 0, $-h_T$, suivant la classe A, B ou C des parois, on peut étendre le raisonnement que L. Néel a développé dans le paragraphe 6 de son mémoire au calcul de l'aimantation rémanente J'_r qui subsiste après suppression de la tension ($t' > t'_0 + t$). Dans le cas où la tension est suffisamment intense pour que h_T soit nettement supérieur à $S_v \log t'$ pendant toute la durée de l'expérience (h_T en valeur absolue au moins égal à $7S_v$ ou $8S_v$), on trouve, en première approximation, la formule :

$$\left. \begin{aligned} J'_r = \frac{b}{4}(H + S_v \log t - S_v \log t')^2 \\ + \frac{b}{4}(H - h_T)(H + S_v \log t - S_v \log t') \end{aligned} \right\} \tag{44}$$

$$8S_v < h_T < H.$$

La tension n'a pas effacé entièrement le traînage puisque J'_r est encore fonction de t' : le premier facteur du second membre correspond aux parois B qui ne sont pas affectées par la tension, le second facteur aux parois A et C.

De la formule 44 et de l'expression de J_r on déduit en première approximation :

$$\frac{\partial J'_r}{\partial \log t'} = \left(\frac{1}{2} + \frac{1}{4}\frac{H - h_T}{H}\right)\frac{\partial J_r}{\partial \log t'} \tag{45}$$

expression valable seulement si $h_T > 8S_v$:

$\frac{\partial J_r}{\partial \log t'}$: pente de traînage avant la compression.

$\frac{\partial J'_r}{\partial \log t'}$: pente de traînage après la compression.

De la formule 44 on tire également :

$$\frac{\partial J_r}{\partial h_T} = -\frac{b}{4}(H + S_v \log t - S_v \log t'). \tag{46}$$

Cette expression est bien équivalente à (40) en l'absence de traînage, c'est-à-dire quand $S_v = 0$.

Dans une première série d'expériences, nous avons opéré dans des conditions telles que le terme S_v ($\log t - \log t'$) soit négligeable devant H, en prenant H de l'ordre de 100 S_v et t' de l'ordre de 10 t.

Compte tenu de (41) et de (43) on peut alors écrire :

$$dJ'_r = -b\gamma H dT. \tag{47}$$

Pour éviter les effets du flambage, nous avons choisi des barreaux d'alnico courts (longueur : 24 mm.; section : 240 mm²); nous les avons comprimés, sans dépasser la limite élastique, à l'aide d'une presse hydraulique de l'Institut Polytechnique de Grenoble. Des mesures préliminaires ont montré que le champ magnétique dû à la presse était sans effet notable sur l'aimantation rémanente des alnicos étudiés. L'échantillon ayant acquis une certaine aimantation J_r sous l'action d'un champ H, nous avons examiné l'influence d'une compression P exercée parallèlement au champ. En appliquant des pressions croissantes P_1, P_2, ..., etc., nous avons constaté une diminution de l'aimantation rémanente ΔJ_r sensiblement proportionnelle à P.

Sur la figure 25, sont représentées en fonction de P les valeurs de J_r/H obtenues avec un alnico recuit ($H_c = 200$ œ ; $S_v = 0{,}31$ œ). Les points expérimentaux se situent à peu près sur des droites dont la pente est indépendante de H, sauf pour la plus faible valeur du champ d'aimantation. Ces résultats sont en accord avec la formule 47. Pour ce premier alnico, l'expérience donne $\gamma = 0{,}37$.

Pour un deuxième alnico, de $H_c = 540$ œ, nous avons trouvé $\gamma = 0,30$. Pour comparer ces valeurs à la valeur théorique tirée de la formule 43, il faut connaître λ_s. E. Nesbitt (41) a publié de nombreux résultats concernant la magnétostriction d'alnicos de propriétés voisines de ceux que nous venons de citer. A partir de ses données nous avons calculé γ.

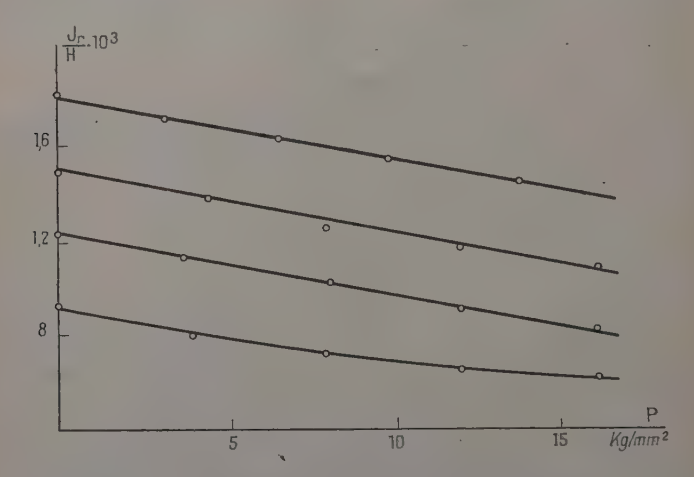


Fig. 25. — Diminution de l'aimantation rémanente sous l'influence des tensions.

Pour un alnico recuit de $H_c = 298$ œ, $\lambda_s = 25 . 10^{-6}$, $J_s = 1\ 100$, il vient : $\gamma = 0,47$.

Pour un alnico de $H_c = 450$ œ, $\lambda_s = 22,3 . 10^{-6}$, $J^s = 1\ 125$, il vient : $\gamma = 0,41$.

Les valeurs de γ ainsi déduites de la théorie ont le même ordre de grandeur que celles que nous avons déterminées expérimentalement.

Des valeurs que nous avons trouvées, on conclut qu'une pression de 1 kg./mm² est équivalente à un champ de :

1,48 œ pour le premier alnico.
1,20 œ pour le deuxième.

L'écart signalé entre la première courbe de la figure 25 et la formule théorique 47 peut être attribué à la valeur relativement grande du champ fictif équivalent aux tensions. Une pression de 15 kg./mm² équivaut en effet pour cet alnico à un champ de 22 œ, soit l'ordre de grandeur du champ magnétisant ($H = 26,2$ œ). On se trouve à la limite de validité de la formule 40.

Dans une nouvelle série d'expériences, l'échantillon a été comprimé au bout d'un intervalle de temps court après la suppression du champ

magnétisant. Nous avons aisément mesuré la variation résiduelle de l'aimantation rémanente en fonction du temps, ayant imposé au champ une valeur faible pour que la variation relative d'aimantation due au traînage soit grande.

Pour l'alnico de $H_c = 540$ œ et de $S_v = 1,70$ œ, aimanté dans un champ de 58 œ, nous avons trouvé, après application d'une pression de 12,5 kg./mm² la relation numérique :

$$\frac{\partial J_r'}{\partial \log t'} = 0,64 \frac{\partial J_r}{\partial \log t'}.$$

La formule théorique 45 donne :

$$\frac{\partial J_r'}{\partial \log t'} = \left(\frac{1}{2} + \frac{1}{4}\,\frac{58 - 12,5 \times 1,2}{58}\right)\frac{\partial J_r}{\log t'} = 0,69 \frac{\partial J_r}{\partial \log t'}.$$

L'accord est satisfaisant.

QUATRIÈME PARTIE

PERTES MAGNÉTIQUES DANS LES CHAMPS FAIBLES

22. Pertes dans un champ alternatif. — Deux effets associés résultent de l'application d'un champ alternatif à un matériau ferromagnétique : une perte d'énergie et un déphasage de l'induction par rapport au champ magnétique ou angle de perte.

En 1924, H. Jordan (20) a décelé l'existence de pertes résiduelles après déduction des pertes par hystérésis et par courants de Foucault. Il a remarqué que l'angle de perte qui leur correspondait était indépendant du champ et de la fréquence.

La nature des pertes résiduelles a fait l'objet d'un grand nombre d'investigations : H. Wittke (46), F. Preisach (14), W. B. Ellwood (45), V. E. Legg (44), R. Feldtkeller (48), etc. Dans les champs très faibles, G. Richter (5), J. L. Snœk (47), R. Becker (28), H. Wilde (9), ont exprimé l'angle de perte en fonction des caractéristiques du traînage quasi statique.

C'est seulement depuis les travaux de L. Néel (12, 17) que la diversité des résultats proposés s'explique par la coexistence de plusieurs espèces de traînage. Cet auteur a pu calculer les pertes associées au traînage réversible et au traînage irréversible, et conclure que les angles de perte qui leur correspondent obéissent à des lois différentes pour les deux catégories de traînage.

En ce qui concerne le traînage de fluctuations thermiques, L. Néel a évalué la puissance perdue par cycle et par centimètre cube ; dans un champ alternatif $h_0 \sin \omega t$:

$$W_t = \pi^2 b S_v h_0^2. \tag{48}$$

Elle est indépendante de la fréquence et liée à la constante caractéristique de traînage par une expression simple.

Le déphasage de l'aimantation par rapport au champ s'écrit :

$$\operatorname{tg} \delta_t = \frac{\pi b S_v}{a_0}. \tag{49}$$

a_0 et b sont les coefficients de Rayleigh.

Les pertes par traînage se superposent aux pertes par courants de Foucault et par hystérésis. On sait que ces dernières ont pour expression, dans le domaine de Rayleigh :

$$w_h = \frac{4}{3} b h^3. \tag{50}$$

Le déphasage correspondant de l'aimantation par rapport au champ est :

$$\operatorname{tg} \delta_h = \frac{4}{3} \frac{b}{a_0} h. \tag{51}$$

Seules les pertes par courants de Foucault dépendent de la fréquence. $\operatorname{tg} \delta_h$ est fonction linéaire du champ ; $\operatorname{tg} \delta_t$ en est indépendant. Le principe de séparation des pertes par variation sélective des paramètres, préconisé par Jordan, est donc applicable lorsqu'il y a traînage de fluctuation.

Aux basses inductions, les pertes sont en général déterminées par la mesure de résistances de pertes avec des ponts alimentés en courant alternatif. Mais les méthodes mises en œuvre sont assez délicates et mal adaptées aux substances magnétiquement dures, les plus indiquées pour l'étude du traînage irréversible. Ce chapitre est consacré à l'étude d'une méthode de mesure des pertes, plus appropriée à l'évaluation de la puissance perdue par traînage de fluctuation.

Nous avons d'abord établi que, théoriquement, dans le domaine de Rayleigh, il existe un rapport simple entre les pertes dans un champ tournant et les pertes dans un champ alternatif, tant pour celles qui sont liées au traînage que pour celles dues à l'hystérésis. La réalisation d'un dispositif expérimental sensible et d'une grande souplesse d'utilisation nous a permis de vérifier la relation existant entre les pertes résiduelles dans les champs tournants et le traînage des expériences quasi statiques.

Certaines lois de ce traînage ont été ainsi précisées.

23. Calcul des pertes dans un champ tournant. — Le comportement d'une substance ferromagnétique n'est pas, dans un champ tournant, le même que dans un champ alternatif. Nous l'analyserons dans le domaine de Rayleigh où les variations d'aimantation sont seulement dues aux déplacements des parois de séparation des domaines élémentaires.

L'application d'un champ magnétique h entraîne un déplacement dx d'une paroi isolée et la variation d'énergie qui accompagne ce déplacement est :

$$(\bar{J} - \bar{I})\bar{h}dx \qquad \text{pour 1 cm}^2 \text{ de paroi.}$$

J et I représentent les vecteurs aimantation spontanée de part et d'autre de la paroi.

Pour une paroi à 180°, $\bar{J}$ et $\bar{I}$ sont opposés (fig. 26). Du point de vue énergétique, seule la composante de $\bar{h}$ parallèle à la direction commune de $\bar{J}$ et $\bar{I}$ intervient.

Pour une paroi à 90°, $\bar{J}$ et $\bar{I}$ sont perpendiculaires. Les composantes $\bar{J'}$ et $\bar{I'}$ suivant leur bissectrice intérieure, égales entre elles, n'entrent pas en jeu dans les variations d'énergie.

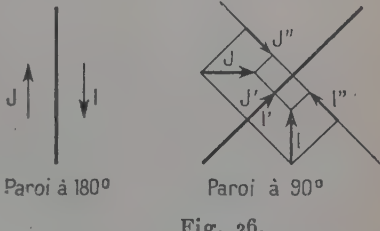


Fig. 26.

Les composantes $\bar{J''}$ et $\bar{I''}$ suivant leur bissectrice extérieure sont opposées. Donc du point de vue énergétique, seule la composante de $\bar{h}$ suivant la deuxième bissectrice intervient.

En nous appuyant sur ces remarques, comparons les pertes dans un champ alternatif d'amplitude maximum h avec les pertes dans un champ tournant d'intensité h.

i) *Pertes dans un champ alternatif.*

Pour les parois à 180°, nous appellerons phase α tous les domaines dont la direction d'aimantation spontanée fait l'angle α avec la direction du champ alternatif appliqué. Nous supposerons une même densité de domaines suivant chaque direction α et une répartition isotrope des directions α sur la sphère unité.

Le déplacement de chaque paroi isolée obéit à des lois similaires des lois de Rayleigh : L. Néel (30). Par suite, comme la phase α est soumise à un champ alternatif d'amplitude $h \cos \alpha$, les pertes associées peuvent, d'après (48) et (50), se mettre sous la forme :

$$w_{h,180} = \frac{4}{3} \beta h^3 \cos^3 \alpha \qquad \text{pour l'hystérésis}$$
$$w_{t,180} = \pi^2 \beta S_v h^2 \cos^2 \alpha \qquad \text{pour le traînage.}$$

Pour évaluer les pertes totales par unité de volume et par cycle, dans toute la substance, il faut prendre les valeurs moyennes de $\cos^3 \alpha$ et de $\cos^2 \alpha$ sur la demi-sphère unité, soient 1/4 et 1/3 :

$$W_{h,180} = \frac{1}{4}\left(\frac{4}{3}\beta h^3\right)$$

$$W_{t,180} = \frac{1}{3}\pi^2\beta S_v h^2.$$

ii) *Pertes dans un champ tournant.*

Soit un champ d'intensité h tournant autour d'un axe Oz. Pour les parois à 180°, appelons phase γ tous les domaines dont la direction d'aimantation spontanée fait l'angle γ avec Oz. La composante du champ tournant suivant la direction γ est un champ alternatif d'amplitude $h \sin \gamma$, et les pertes associées peuvent se mettre sous la forme :

$$w'_{h,180} = \frac{4}{3}\beta h^3 \sin^3 \gamma$$

$$w'_{t,180} = \pi^2\beta S_v h^2 \sin^2 \gamma.$$

Pour évaluer les pertes totales, il faut prendre les valeurs moyennes de $\sin^3 \gamma$ et de $\sin^2 \gamma$ sur la demi-sphère unité, ce qui conduit à :

$$W'_{h,180} = \frac{3\pi}{16}\,\frac{4}{3}\,\beta h^3$$

$$W'_{t,180} = \frac{2}{3}\,\pi^2\beta S_v h^2.$$

Les mêmes raisonnements s'appliquent aux parois à 90° en considérant non plus la direction des aimantations, mais la direction de leur bissectrice extérieure, et l'on a :

$$\frac{W'_{h,180}}{W_{h,180}} = \frac{W'_{h,90}}{W_{h,90}} = \frac{W'_{h,180} + W'_{h,90}}{W_{h,180} + W_{h,90}}$$

$$\frac{W'_{t,180}}{W_{t,180}} = \frac{W'_{t,90}}{W_{t,90}} = \frac{W'_{t,180} + W'_{t,90}}{W_{t,180} + W_{t,90}}.$$

Finalement, les rapports des pertes totales dans un champ tournant aux pertes dans un champ alternatif s'écrivent :

$$\frac{W'_h}{W_h} = \frac{\frac{3\pi}{16}}{\frac{1}{4}} = \frac{3\pi}{4} = 2{,}36 \qquad \text{pour l'hystérésis (1)}$$

$$\frac{W'_t}{W_t} = \frac{2/3}{1/3} = 2 \qquad \text{pour le traînage.}$$

Ils ont des valeurs remarquablement simples.

(1) Dans un récent travail, T. A. Elkina (50) a signalé, dans le cas particulier d'une substance uniaxe, cette même valeur pour les pertes par hystérésis.

En conclusion, les pertes dans les champs tournants sont, d'après (48) et (50), données par :

$$W'_h = \pi b h^3 \qquad (52)$$

$$W'_t = 2\pi^2 b S_v h^2. \qquad (53)$$

24. Principe de la mesure des pertes dans un champ tournant. — Les pertes se traduisent dans un champ tournant, comme dans un champ alternatif, par un retard de phase ε de l'aimantation par rapport au champ magnétique ; par suite, l'appareil producteur du champ tournant h exerce sur un centimètre cube de substance un couple :

$$C = Jh \sin \varepsilon.$$

En désignant par φ l'angle de rotation du champ, l'énergie dépensée par cycle est :

$$E = \int_0^{2\pi} C d\varphi = 2\pi J h \sin \varepsilon.$$

Si l'on opère dans des conditions telles que les pertes par courants induits soient négligeables, on a :

$$2\pi J h \sin \varepsilon = W'_h + W'_t.$$

Dans un champ h très faible, pour une substance magnétiquement dure, J est pratiquement égal à $a_0 h$ (§ 12). Les angles ε étant très petits, on confond sin ε, ε et tg ε. On peut écrire, en première approximation :

$$2\pi a_0 h^2 \operatorname{tg} \varepsilon = W'_h + W'_t.$$

Cette équation permet d'évaluer d'après (52) et (53), les angles de perte associés au traînage et à l'hystérésis :

$$\operatorname{tg} \varepsilon_h = \frac{b}{2a_0} h \qquad \operatorname{tg} \varepsilon_t = \frac{\pi b S_v}{a_0}.$$

On retrouve pour le traînage le même angle de perte que dans un champ alternatif.

L'angle de perte par traînage est, sous une autre forme, égal à :

$$\operatorname{tg} \varepsilon_t = \frac{\pi b H_c}{a_0} \cdot \frac{S_v}{H_c}.$$

D'après L. Néel, $\frac{bH_c}{a_0}$ varie peu d'une substance à une autre. Nous avons montré, d'autre part (fig. 20), qu'en première approximation, S_v est proportionnel à H_c. Il en résulte que, pour toutes les substances ferromagnétiques, les angles de perte seront du même ordre de grandeur.

Pour mesurer les pertes, nous avons équilibré le couple dû au champ tournant par le couple de torsion d'un fil.

Si Γ est la constante de torsion de ce fil, l'équilibre est atteint lorsque l'échantillon a tourné d'un angle θ tel que :

$$\Gamma\theta = vh^2\left(\pi b S_v + \frac{b}{2} h\right) \tag{54}$$

v : volume de l'échantillon.

Lorsque Γ est connu, la mesure de θ fournit les éléments nécessaires au calcul des pertes.

25. Dispositif expérimental. — L'équipage mobile portant l'échantillon est suspendu à un fil de torsion en tungstène. Il comporte, de haut en bas successivement :

— un cadre en laiton portant des palettes pour réaliser un amortissement dans l'huile ;

— une tige de verre sur laquelle est fixé un miroir pour le repérage optique des rotations de l'équipage ;

— un porte-échantillon en plexiglas.

La partie de l'équipage soumise au champ tournant est en verre et en plexiglas pour éviter les courants de Foucault. L'équipage est enfermé dans un tube en pyrex portant une fenêtre plane à la hauteur du miroir.

Nous avons représenté sur la figure 27 la partie supérieure du système. La possibilité de faire le vide par le tube A et d'introduire par le tube B un gaz quelconque, air, hydrogène ou hélium, a été prévue pour les mesures à basse température. La couronne C en acier, collée à la picéine sur le tube de verre, le chapeau D et le joint toroïdal E assurent au tube une fermeture étanche.

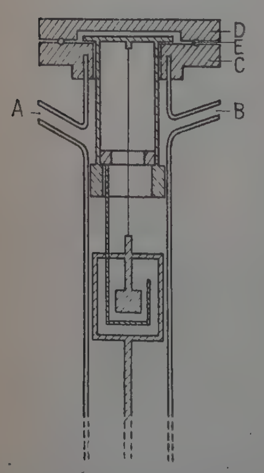


Fig. 27. — Suspension de l'équipage mobile pour les mesures dans les champs tournants.

Les champs tournant à faible période sont engendrés par la rotation de deux bobines de Helmholtz entraînées par un moteur à réducteur de vitesse. Pour créer des champs tournant à des fréquences égales ou supérieures à 50 p/s., nous avons construit trois couples de deux bobines, décalées de $2\pi/3$ et alimentées en courant triphasé. Un alternateur entraîné par un moteur shunt nous a permis de produire des champs tournant à toutes les fréquences intermédiaires entre 250 p/s. et 800 p/s. Le réglage de l'intensité est commandé par l'excitation de l'alternateur.

Pour étudier les pertes à basse température, un vase Dewar a été spécialement construit pour être introduit entre les bobines de champ (fig. 28). La forme sphérique de

la partie supérieure augmente la capacité du vase. Les gaz vaporisés au cours des essais, en particulier l'hélium, sont récupérés et renvoyés aux installations du Laboratoire des basses Températures dirigé par M. le Professeur Weil. Dans ce but, un soufflet en tombac et un joint de caoutchouc constituent une liaison étanche et souple entre le tube de verre et le chapeau de maillechort coiffant le vase Dewar.

La constante de torsion de chaque fil de suspension a été déterminée par la méthode classique : lecture de la période d'oscillation du système sans surcharge, puis avec une surcharge de moment d'inertie connu. Avec un fil de tungstène de 30 μ, on obtient pour la longueur de fil utilisé (19 cm.), une constante de torsion de l'ordre de 0,800 erg/rd. Une énergie dissipée de 0,5 erg par cycle se manifeste, sur l'échelle graduée située à 1 m. du miroir, par une déviation du spot de 20 cm.

Pour un alnico de caractéristiques suivantes :

$$v = 0{,}455 \text{ cm}^3 \qquad b = 2{,}9 \cdot 10^{-4} \qquad S_v = 2{,}4 \text{ œ}$$

l'énergie de 0,5 erg est celle perdue par l'échantillon pour un cycle de rotation d'un champ tournant de 7,5 œ. Pour cette valeur du champ, le calcul indique que les pertes par traînage sont sensiblement doubles des pertes par hystérésis. Avec un fil de 15 μ, la sensibilité est environ 16 fois plus grande.

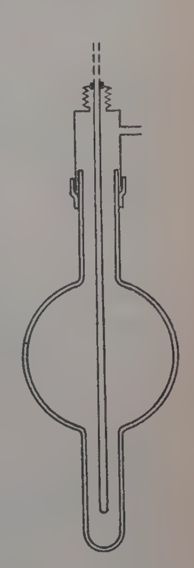


Fig. 28. — Dispositif pour les mesures à basses températures.

Il est donc possible de soumettre à l'étude un domaine où les pertes par hystérésis deviennent faibles par rapport aux pertes par traînage.

Le dispositif que nous avons mis au point nous a ainsi conduit à explorer, dans les champs faibles, un domaine que nous n'aurions pu envisager d'atteindre par les procédés quasi statiques que nous avons décrits.

26. Résultats expérimentaux. — *Travaux antérieurs.* — Depuis les premiers travaux de Baily (51) sur l'hystérésis tournante, plusieurs auteurs ont mesuré les pertes dans des champs tournants, mais, en général, ils ont opéré dans des champs magnétiques intenses, et leurs résultats ne peuvent être interprétés en partant des équations de Rayleigh (51 à 60).

Cependant, Brailsford (56, 57) a suivi l'évolution du rapport $\frac{W'_h}{W_h}$ en fonction de l'induction, depuis l'aimantation à saturation jusqu'à 1/10 de sa valeur environ : ce rapport croît quand l'induction décroît. Pour les valeurs de l'induction les plus faibles, la valeur trouvée est en moyenne un peu supérieure à 2 ; elle se rapproche de la valeur théorique 2,36 que nous avons calculée pour le domaine de Rayleigh.

Séparation des pertes dans les champs tournants. — Les principes et dispositifs expérimentaux que nous avons décrits ont, tout d'abord, été appliqués à la détermination des pertes dans les champs tournants. Pour être à l'abri des effets dûs aux courants induits nous avons opéré dans des champs tournant à faible période : 1,5 p/s. à 2p/s. Dans ces conditions, pour les échantillons choisis, les pertes par courants induits ne dépassent pas 2 à 3 o/o des pertes totales. L'équation 54 donne la relation entre les pertes magnétiques totales et les pertes par hystérésis et par traînage, sous la forme :

$$W' = W'_h + W'_t = 2\pi\Gamma\theta \pm vh^2(2\pi^2 bS_v + \pi bh) \qquad (55)$$

Nous avons tracé la courbe de variation des pertes totales pour des valeurs croissantes du champ (fig. 29). Les courbes illustrent trois séries de mesures effectuées aux températures : 293° K, 77° K, 20° K. La figure 30 représente les valeurs correspondantes du rapport W'/h^2 en fonction du champ. Les points sont correctement alignés, ce qui

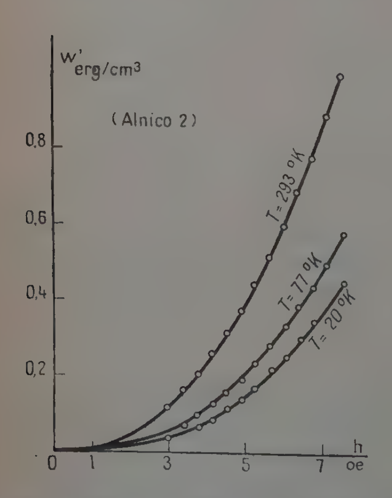


Fig. 29. — Pertes magnétiques dans les champs tournants.

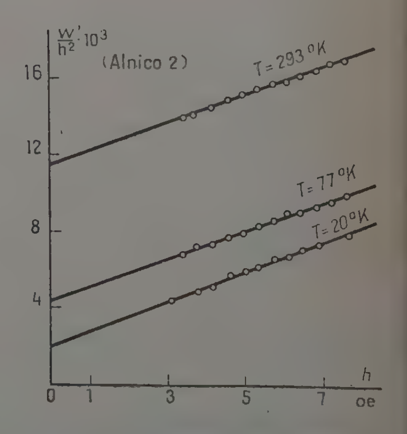


Fig. 30. — Séparation des pertes par hystérésis et des pertes par traînage.

confirme les prévisions théoriques contenues dans la formule 55. L'extrapolation des droites pour $h = 0$ fournit la valeur des pertes dues au traînage ; de leur pente, on déduit les pertes par hystérésis.

Rapport des pertes dans les champs alternatifs et dans les champs tournants. — L'expression des pertes dans des champs alternatifs (formules 48 et 50) fait appel aux valeurs des constantes caractéristiques de l'échantillon. Nous avons tiré a_0, b, S_v de mesures quasi statiques. Nous groupons dans le tableau les valeurs du rapport des pertes par hystérésis et par traînage dans des champs tournants et dans des champs alternatifs, pour quelques-uns des échantillons éprouvés ;

Echantillon	a_0	b	S_v	W'_h/W_h	W'_t/W_t
Alnico 1 . . .	0,348	$2{,}83.10^{-4}$	2,4	2,65	2,10
Ferrite Co . .	$1{,}13.10^{-2}$	$3{,}35.10^{-6}$	7,1		2,25
Alnico 2 . . .	0,303	$2{,}88.10^{-4}$	2,3	2,00	1,75

Les valeurs des rapports $\frac{W'_h}{W_h}$ et $\frac{W'_t}{W_t}$ ne diffèrent pas de plus de 15 o/o des valeurs théoriques ; ces écarts sont de l'ordre de grandeur des erreurs de mesure. L'accord est donc très satisfaisant. Les bases théoriques semblent solides.

Etude de S^v *à l'aide des champs tournants.* — La comparaison des formules 52 et 53 met en évidence qu'il y a égalité des pertes par hystérésis et par traînage lorsque :

$$h = 2\pi S_v.$$

Du tracé de la droite $(W'/h^2, h)$, on déduit facilement la valeur du champ pour laquelle il y a égalité des pertes ; on en tire directement la valeur de la constante S_v, sans avoir à mesurer ni la constante de torsion du fil, ni les coefficients de Rayleigh du matériau utilisé.

On dispose ainsi d'un procédé nouveau et particulièrement simple de détermination de la constante de traînage.

Par ce procédé, nous avons tout d'abord suivi la variation de S_v en fonction de la température. Les trois droites de la figure 30 ayant sensiblement la même pente, le coefficient de Rayleigh b garde, pour les trois températures, la même valeur. C'est dire que le rapport des

ordonnées à l'origine est égal au rapport des valeurs de S_v à ces températures. Pour l'échantillon d'alnico 2 :

$$\frac{(S_v)_{293^\circ K}}{(S_v)_{77^\circ K}} = 2,60 \qquad \frac{(S_v)_{293^\circ K}}{(S_v)_{20^\circ K}} = 5,7.$$

D'autre part :

$$\left(\frac{293}{77}\right)^{3/4} = 2,72 \qquad \left(\frac{293}{20}\right)^{3/4} = 7,5$$

S_v varie donc comme $T^{3/4}$ jusqu'à la température de l'air liquide. A plus basse température on se rapproche d'une loi en $T^{1/2}$.

Les mesures dans les champs tournants apportent la confirmation de la loi trouvée au cours des expériences quasi statiques.

Les mêmes expériences effectuées sur un échantillon de ferrite de cobalt ($H_c = 1\,500$ œ) ont conduit à un résultat très différent :

$$\frac{(W'_t)_{293^\circ K}}{(W'_t)_{77^\circ K}} = \frac{(bS_v)_{293^\circ K}}{(bS_v)_{77^\circ K}} = 8$$

$$\frac{(W'_t)_{293^\circ K}}{(W'_t)_{20^\circ K}} = \frac{(bS_v)_{293^\circ K}}{(bS_v)_{20^\circ K}} = 29.$$

Ces résultats peuvent être attribués aux propriétés du ferrite de cobalt à basse température. L. Weil (62) a en effet observé une variation importante du champ coercitif du ferrite de cobalt quand on abaisse la température, et, corrélativement, il est probable que le coefficient de Rayleigh b diminue beaucoup.

En raison de sa haute résistivité, nous avons poursuivi, sur le ferrite de cobalt, nos essais en faisant varier la fréquence jusqu'à 800 périodes par seconde, les pertes par courants induits restant négligeables. Sur la figure 31 sont reportées les valeurs du rap-

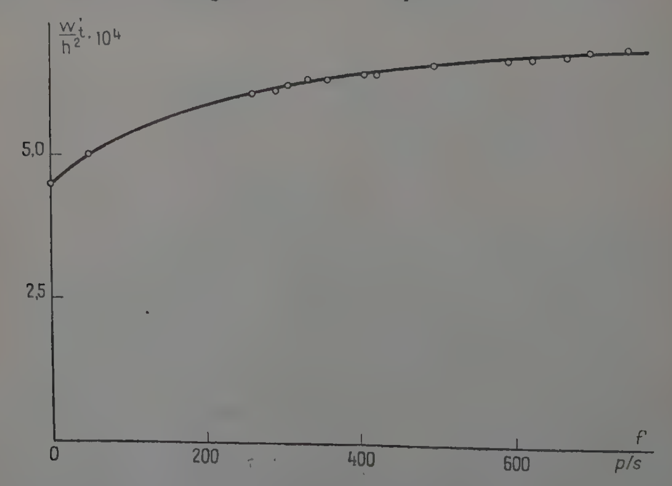


Fig. 31. — Variation des pertes par traînage en fonction de la fréquence.

port W'_{t/h^2} en fonction de la fréquence : lorsque celle-ci croît de 0 à 800 p/s., les pertes résiduelles augmentent d'environ 50 o/o. Ce résultat semblerait indiquer que, dans les champs très faibles, de l'ordre de 1/350 du champ coercitif, la constante de traînage subit une variation lente en fonction de la fréquence.

CONCLUSION

En isolant le traînage de fluctuation de toute autre espèce de traînage, nous nous sommes efforcé d'en décrire les différents aspects et d'en expliciter les lois dans une étude d'ensemble dont il n'avait jusqu'alors pas fait l'objet.

C'est l'idée nouvelle, due à L. Néel, d'une distinction entre différentes catégories de traînage qui a suggéré ce travail.

L'hypothèse d'un champ fictif fluctuant dont L. Néel est parti pour ériger sa théorie du traînage de fluctuation, constitue la base de l'interprétation de toutes nos expériences.

Résumons les principaux caractères du traînage irréversible que nous avons mis en évidence.

Le champ fluctuant de traînage garde sensiblement la même valeur dans tout le domaine d'hystérésis.

Ceci autorise à caractériser le traînage, pour une substance donnée, par une constante S_v homogène à un champ magnétique.

L'aimantation varie proportionnellement au logarithme du temps. La constante de proportionnalité est le produit de la susceptibilité différentielle irréversible et de la constante S_v.

Dans le domaine de Rayleigh les lois du traînage s'expriment en des formules particulièrement simples.

La variation de la racine carrée de l'aimantation rémanente est une fonction linéaire de log t et de log t', où t est égal à la durée de l'aimantation préalable et t' à l'intervalle de temps écoulé depuis le retour du champ à zéro.

Le traînage de l'aimantation créée par un champ H est le double du traînage de l'aimantation rémanente correspondante.

Nous avons vérifié ces lois sur une grande échelle de temps.

L'étude de la variation du paramètre S_v en fonction de la température a montré qu'il était sensiblement proportionnel à $T^{3/4}$ entre la température de l'hydrogène liquide et 100° C.

Il existe un parallélisme entre l'effet du temps sur l'aimantation et l'influence de certains facteurs : recuit, champ alternatif décroissant, compression. Dans le domaine de Rayleigh :

— Une élévation de température, suivie d'un retour à la tempéra-

ture initiale entraîne une diminution de la racine carrée de l'aimantation rémanente proportionnelle à l'élévation de température.

— Un faible champ alternatif, décroissant jusqu'à zéro, entraîne une diminution de la racine carrée de l'aimantation rémanente qui lui est proportionnelle.

— Une pression entraîne une diminution de l'aimantation rémanente qui lui est proportionnelle.

— Un recuit ou un champ alternatif supprime le traînage, une compression ne l'efface que partiellement.

Le traînage se manifeste, dans les champs tournants comme dans les champs alternatifs, par des pertes énergétiques. Mais dans les champs tournants les pertes par traînage sont multipliées par 2 tandis que les pertes par hystérésis sont multipliées par 2,36.

Après déduction des pertes par hystérésis et par courants de Foucault, les pertes résiduelles correspondant au traînage sont proportionnelles à S_v.

Des expériences dans les champs tournants effectuées à différentes températures ont confirmé la loi de variation thermique de S_v établie au cours d'expériences quasi statiques.

La validité de toutes ces lois, éprouvée sur une grande variété de substances, permet de conclure à la généralité du traînage de fluctuation.

Notre travail apporte un premier témoignage en faveur des hypothèses proposées et développées par L. Néel, dans sa théorie générale du traînage.

(Travail du Laboratoire d'Electrostatique et de Physique du Métal de Grenoble).

BIBLIOGRAPHIE

(1) J. A. Ewing. — *Phil. Trans.*, 1885, **176**, 569.
(2) J. A. Ewing. — *Proc. Roy. Soc.*, 1889, **46**, 269.
(3) H. Atorf. — *Z. f. Physik*, 1932, **76**, 513.
(4) C. E. Webb et L. H. Ford. — *J. Inst. El. Eng.*, 1934, **75**, 787.
(5) G. Richter. — *Ann. Phys. Lpz.*, 1937, **29**, 605.
(6) C. W. Heaps. — *Phys. Rev.*, 1938, **54**, 288.
(7) J. L. Snœk. — *Physica*, 1938, **5**, 663.
(8) A. Mitkevitch. — *J. de Phys.*, 1936, **7**, 133.
(9) H. Wilde. — *Frequenz*, 1949, **3**, 309.
(10) H. Fahlenbrach. — *Ann. Physik*, 1948, **2**, 335.
(11) R. Feldtkeller. — *E. angew. Phys. Dtsch.*, 1950, **2**, 494.
(12) L. Néel. — *J. Phys. Rad.*, 1951, **12**, 339.
(13) L. Néel. — *J. Phys. Rad.*, 1952, **13**, 249.
(14) F. Preisach. — *Z. f. Physik*, 1935, **94**, 277.
(15) P. Courvoisier. — *Sitz der Bayer Ak. Wiss.*, 1945, **10**, 89.
(16) L. Néel. — *Ann. Géophys.*, 1949, **5**, 99.
(17) L. Néel. — *J. Phys. Rad.*, 1950, **11**, 49.
(18) R. Street et J. C. Woolley. — *Proc. Phys. Soc.*, 1949, **62** A, 141.
(19) R. Street et J. C. Woolley. — *Proc. Phys. Soc.*, 1950, **63** B, 509.
(20) H. Jordan. — *Elektr. Nachr. Techn.*, 1924, **1**, 7.
(21) R. M. Bozorth. — *Phys. Rev.*, 1928, **32**, 124.
(22) J. Okûro si N. Yamanoka. — *Sc. Rep. Tokohu Imp. Un.*, 1939, **27**, 429.
(23) S. Maeda. — *J. Phys. Soc. Jap.*, 1950, **5**, 358.
(24) R. V. Telesnin. — *Zh. eksper. Teor. Fiz, SSSR*, 1948, **18**, 970.
(25) R. V. Telesnin. — *Dokl. Akad. Nauk. SSSR*, 1950, **75**, 659.
(26) C. Kittel. — *Phys. Rev.*, 1946, **69**, 640.
(27) P. Dejean. — *Thèse Paris*, 1922.
(28) R. Becker et W. Döring. — *Ferromagnetismus*, Springer, Berlin, 1939.
(29) Lord Rayleigh. — *Phil. Mag.*, 1887, **23**, 225.
(30) L. Néel. — *Cahiers de Phys.*, 1942, **12**, 1.
(31) L. Néel. — *Cahiers de Phys.*, 1943, **13**, 18.
(32) R. Gans. — *Ann. Physik*, 1910, **33**, 1065.
(33) E. Thellier. — *Ann. Inst. Phys. Globe*, 1938, **16**, 157.
(34) R. Forrer. — *J. de Phys.*, 1929, **7**, 247.
(35) A. Lacaze. — *Thèse*, Grenoble, 1950.
(36) E. Darmois et G. Ribaud. — *Ann. Phys.*, 1924, **1**, 173.
(37) L. Lliboutry. — *Thèse*, Grenoble, 1950.
(38) R. Street, J. C. Woolley, P. B. Smith. — *Proc. Phys. Soc.*, 1952, **65** B, 461.
(39) R. Street, J. C. Woolley, P. B. Smith. — *Proc. Phys. Soc.*, 1952, **65** B, 679.
(40) W. F. Brown. — *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 147.
(41) E. A. Nesbitt. — *J. Applied. Phys.*, 1950, **21**, 879.
(42) R. M. Bozorth et D. M. Chapin. — *J. Applied Phys.*, 1942, **13**, 320.
(43) M. Peschard. — *Revue de Métal.*, 1925, **22**, 490.
(44) V. E. Legg. — *Bell. Syst. Techn. J.*, 1936, **16**, 39.

(45) W. B. Ellwood et V. E. Legg. — *J. applied Phys.*, 1937, **8**, 351.
(46) H. Wittke. — *Ann. Phys.*, 1938, **31**, 97.
(47) J. L. Snœk. — *Physica*, 1939, **6**, 797.
(48) R. Feldtkeller, H. Hettich. — *Z. angew. Phys. Dtsch.*, 1950, **2**, 434.
(49) G. Corazzini. — *Post. Telecom. Ital.*, 1943, **15**, 271.
(50) T. A. Elkina. — *Zh. eksper. teor. SSSR*, 1950, **20**, 84.
(51) F. G. Baily. — *Trans. Roy. Soc. Londres*, 1896, **187 A**, 715.
(52) R. Beattie. — *Phil. Mag.*, 1901, **1**, 642.
(53) P. Weiss et V. Planer. — *J. Physique*, 1908, **7**, 5.
(54) R. Gans et R. G. Loyarte. — *Arch. Elektrotech.*, 1915, **3**, 139.
(55) J. Vonharlem. — *Ann. Phys.*, 1932, **14**, 667.
(56) F. Brailsford. — *J. Inst. Elec. Eng.*, 1938, **83**, 566.
(57) F. Brailsford. — *J. Inst. Elec. Eng.*, 1939, **84**, 399.
(58) L. P. Tarasov. — *Phys. Rev.*, 1939, **56**, 1170.
(59) F. J. Beck et J. G. Clarke. — *J. applied. Phys.*, 1941, **12**, 860.
(60) H. E. Jaeschke. — *Arch. Elektrotechn.*, 1943, **37**, 413.
(61) K. Kronenberg. — Résultats inédits.
(62) L. Weil. — Résultats inédits.
(63) R. Feldtkeller, H. Wilde, G. Hoffman. — *Z. angew. Dtsch.*, 1951, **3**, 401.
(64) N. Bulgakov, E. Kondorsky. — *Dokl. Akad. Nauk. SSSR*, 1949, **69**, 325.

Le Gérant : G. Masson.

DÉPÔT LÉGAL : 1954, 1er TRIMESTRE, No D'ORDRE 1907, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
BARNÉOUD FRÈRES ET Cie, IMPRIMEURS (31.0566), LAVAL, No 2879. — 1-1954.

ÉTUDE EXPÉRIMENTALE DE QUELQUES PHÉNOMÈNES DE CONVECTION NATURELLE PAR LES FILS

Par M. Charles BORY
Chargé de Recherches au CNRS. Laboratoire des hautes Températures.

INTRODUCTION

La puissance calorifique qu'un corps solide chauffé dissipe par convection naturelle dépend, pour un même échauffement, des valeurs absolues des températures du corps et du fluide de refroidissement. Pour une différence de température de 100° par exemple entre solide et fluide, le coefficient de convection n'est pas absolument le même dans de l'air à 10° et dans de l'air à 80°. C'est l'étude expérimentale de ces variations que nous nous proposons de présenter dans la première partie de ce mémoire, pour le cas d'un fil fin tendu horizontalement en air calme à la pression usuelle de l'atmosphère.

Nous désignerons par t_1 et t_0 les températures du fil et de l'air de refroidissement, l'échauffement sera : $\theta = t_1 - t_0$; la puissance dissipée totale pour un fil de longueur l étant désignée par W, nous en retrancherons ce qui est perdu par rayonnement et par conduction sur les extrémités du fil vers les bornes, de façon à obtenir la puissance dissipée par convection, soit W_1. Le coefficient de convection au sens usuel du mot, c'est-à-dire correspondant à la chaleur transmise à travers l'unité de surface d'échange, est : $\alpha = W_1/\pi d l \theta$, où d est le diamètre du fil. Pour les études que nous avons en vue il est plus commode de rapporter la perte de chaleur à l'unité de longueur du fil, nous sommes ainsi conduit à définir par : $h = W_1/l\theta$ ce que nous appellerons le coefficient linéaire de convection [1], et il nous arrivera même pour certaines comparaisons d'utiliser le coefficient global : $c = W/\theta$, nous mettant ainsi à l'abri des critiques qui pourraient être faites dans le calcul des corrections.

[1] Au facteur $1/\lambda$ près, h est le nombre de Biot.

Nous avons dans un mémoire précédent [1] étudié avec quelques détails les variations de h en fonction de l'échauffement et du diamètre du fil pour une température t_0 constante de l'air de refroidissement, nous renvoyons à ce mémoire pour le calcul des corrections de rayonnement et de perte de chaleur par les bouts et pour la discussion de diverses questions que nous rencontrerons plus loin.

DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL. MÉTHODE DE MESURE

On se reportera à la figure 1. Le fil en expérience F est soudé sur deux bornes B supportées par deux joues en ébonite J ; le ressort R assure la tension du fil. Les joues sont formées d'une partie carrée de

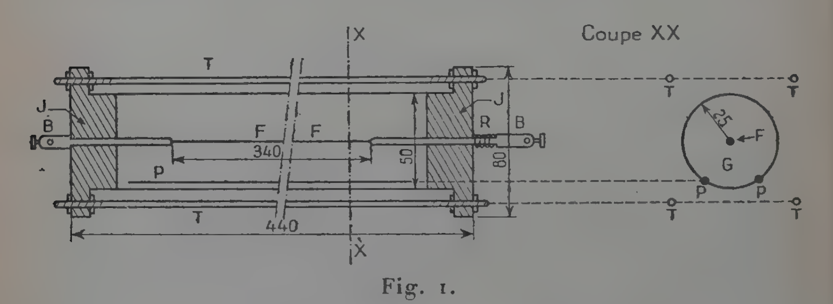


Fig. 1.

80 mm. de côté qui permet leur assemblage par les quatre tiges T et d'un épaulement cylindrique de 50 mm. de diamètre centré sur les bornes B. Une feuille de bristol enroulée sur ces parties cylindriques forme un tube protecteur suivant l'axe duquel se trouve tendu le fil. Les dimensions de l'appareil sont cotées en millimètres sur la figure. Le tube d'expériences est disposé au milieu d'une boîte cylindrique de 20 cm. de diamètre dont les parois, en bristol également, sont recouvertes d'un découpage de papier d'étain formant une résistance superficielle chauffante. On obtient ainsi une étuve permettant d'augmenter la température t_0, tout en réalisant un ensemble d'inertie thermique relativement faible. Le tout est protégé des courants d'air par une grande caisse en bois.

La température t_1 du fil se détermine par la mesure de sa résistance électrique; la température t_0 de l'air est celle qui règne dans la région marquée G sur la coupe de la figure 1, nous la déterminons par la mesure de la résistance électrique de fils de platine P tendus

(1) Publications scientifiques et techniques du Ministère de l'Air. Série grise, fascicule 189.

contre l'enceinte cylindrique de protection. On trouvera dans notre mémoire précédent la discussion de l'emplacement à donner à ces fils.

Le coefficient de convection h est fonction de l'échauffement θ et de la température t_0, mais en général une variation de 1° sur θ produit une variation de h bien plus importante qu'une variation de 1° sur t_0, il est donc nécessaire de maintenir θ constant avec précision dans les expériences où l'on veut étudier les effets des variations de t_0 à échauffement constant. Pour obtenir cette constance avec toute la précision désirable nous avons employé le procédé suivant :

Reportons-nous au montage en pont de Wheatstone de la figure 2. En AC_1 se trouve le fil F dont la résistance à 0° est r_0, en AC_2 le fil P

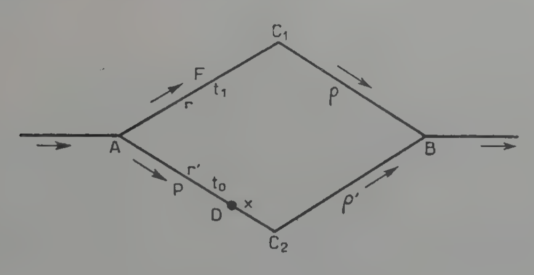


Fig. 2.

de résistance r'_0 à 0°, et en série avec lui une résistance fixe x, en C_1B et C_2B sont des résistances fixes ρ et ρ' vérifiant l'égalité :

$$r_0\rho' = r'_0\rho \qquad (1)$$

le pont est équilibré à 0° lorsqu'on fait $x = 0$. Il l'est également à toutes températures car les fils F et P, extraits d'une même bobine et recuits dans les mêmes conditions, ont les mêmes coefficients de température.

Admettons en première approximation que les résistances des fils de platine s'accroissent linéairement en fonction de la température, on a :

$$r = r_0(1 + \alpha t_1) \qquad \text{et} \qquad r' = r'_0(1 + \alpha t_0).$$

La condition d'équilibre du pont en présence de la résistance x s'écrit :

$$r_0(1 + \alpha t_1)\rho' = [r'_0(1 + \alpha t_0) + x]\rho$$

et compte tenu de la relation (1) :

$$t_1 - t_0 = \theta = x/r'_0\alpha \qquad (2)$$

x restant fixe le fait d'équilibrer le pont maintient θ constant ; ayant par exemple calculé x pour avoir $\theta = 100^\circ$, il suffit pour obtenir cet échauffement d'équilibrer le pont en faisant varier l'intensité dans le fil F, θ est alors égal à 100° quelle que soit la valeur de t_0.

Pour mettre pratiquement en jeu la méthode deux difficultés se présentent :

1° L'intensité dans le fil F doit être assez élevée pour le maintenir en température, celle-ci doit être dans certaines expériences de plusieurs centaines de degrés au-dessus de la température ambiante ; le fil P au contraire ne doit être parcouru que par un courant de mesure très faible pour éviter son échauffement. Les deux fils ayant des résistances du même ordre de grandeur on ne peut songer à les

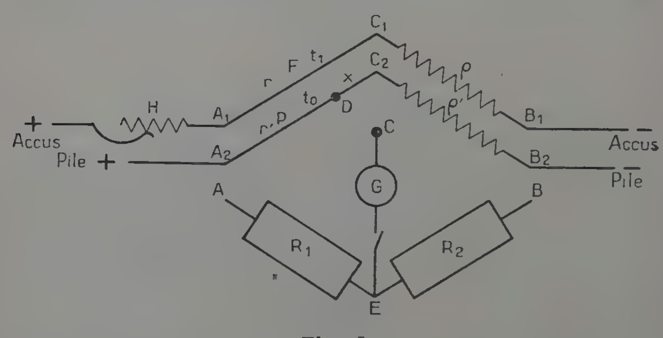


Fig. 3.

alimenter à tensions égales comme cela se ferait selon le schéma de la figure 2. Nous avons donc monté séparément les branches $A_1C_1B_1$ et $A_2C_2B_2$ (figure 3), les premières sont alimentées par une batterie d'accus, les secondes par une pile. Deux boîtes de résistances sont disposées comme il est indiqué schématiquement sur la figure. Un inverseur permet de passer rapidement des connexions AA_1, CC_1, BB_1 à AA_2, CC_2, BB_2, on réalise ainsi deux montages de pont ; s'il y a équilibre dans les deux cas on peut écrire :

$$rR_2 = \rho R_1 \quad \text{et} \quad (r' + x)R_2 = \rho' R_1 \quad \text{d'où :} \quad r\rho' = (r' + x)\rho$$

il y a équilibre pour le pont idéal de la figure 2.

2° La loi de variation linéaire de la résistance avec la température n'est pas suffisamment exacte, il faut tenir compte du terme du second degré et écrire :

$$r = r_0(1 + kt_1 - \lambda t_1^2) \qquad \text{et} \qquad r' = r'_0(1 + kt_0 - \lambda t_0^2). \tag{3}$$

Dans ces conditions en écrivant les équations d'équilibre du pont et en tenant compte ici encore de (1) on obtient :

$$x = r'_0\theta(k - \lambda\theta) - 2r'_0\lambda\theta t_0. \quad (4)$$

Il s'introduit un terme *qui dépend de* t_0, mais qui est petit devant le premier, son calcul ne demande donc pas que t_0 soit connu avec précision. x ayant été calculé pour obtenir un θ donné à une température t_0 déterminée, celle-ci pourra varier de façon assez notable sans que cela entraîne une variation inacceptable sur θ.

La puissance dissipée se calcule à partir des valeurs des résistances électriques constituant le pont et du voltage V mesuré par un voltmètre entre les bornes A_1 et B_1, on voit facilement qu'elle est :

$$W = \frac{R_1R_2V^2}{\rho(R_1 + R_2)^2}.$$

MARCHE DES EXPÉRIENCES

Proposons-nous de faire une mesure pour laquelle θ ait une valeur déterminée, par exemple 50°, et t_0 une valeur voisine d'une température donnée, par exemple 60°. Des expériences préliminaires permettent de calculer de façon approchée les intensités de courant qu'il faut admettre dans le fil et dans la boîte chauffante pour réaliser ces conditions. On établit donc le courant, et, après une durée de mise en régime suffisante (environ une heure), on mesure la résistance r' du fil P. Ceci s'effectue sur le pont de Wheatstone obtenu en établissant les connexions AA_2, BB_2, CC_2, après avoir court-circuité x. On équilibre le pont en agissant sur les résistances R_1 et R_2. De r' on déduit t_0 et on calcule par la formule (4) la valeur qu'il faut donner à x pour obtenir le θ désiré. Etablissant les connexions AA_1, BB_1, CC_1 on équilibre le pont F, ρ, R_1, R_2, ceci se fait en modifiant au moyen du réhostat H l'intensité dans le fil F. A la suite de ces modifications, en général faibles, t_0 a légèrement varié, on revient au pont $P + x$, ρ', R_1, R_2 qu'on rééquilibre en agissant sur R_2 et on recommence les mêmes opérations jusqu'à obtenir simultanément l'équilibre des deux ponts. Avec un peu d'habitude ces opérations se font rapidement et facilement et l'équilibre obtenu persiste avec le temps si la première mise en régime a été faite de façon correcte. Après cette suite de réglages la température t_0 se trouve être un peu différente de celle pour laquelle a été calculé x. Il en résulte que θ n'a pas exactement la valeur voulue, en fait cela n'entraîne pas d'erreurs appréciables car la tolérance sur t_0 est grande : dans le cas le plus

défavorable du champ des θ et t_0 expérimentés on pouvait se permettre sur t_0 une variation de $\pm 4^\circ$ sans que l'erreur en résultant sur θ dépasse le 1/1 000 en valeur relative.

Les caractéristiques de l'appareillage. — Fil F en platine, diamètre 77,1 μ, longueur 340,6 mm.

Coefficient de température entre 0° et 100° : $\alpha = 0{,}00365$.

Coefficient de la formule parabolique : $k = 0{,}003695$ . . . $\lambda = 4{,}74 \times 10^{-7}$.

Résistance à 0° : 7,810 Ω.

Fil P, constitué du même platine, résistance : 28,20 Ω.

Résistances fixes : $\rho = 7{,}558$ Ω ; $\rho' = 27{,}29$ Ω.

Dans la plupart des expériences on a pris : $R_2 = 100\rho' = 2\,729$ Ω.

PRÉCISION DES RÉSULTATS

Notre but est moins la détermination en valeurs absolues des coefficients : $\alpha = W/\pi dl\theta$ que d'étudier leur loi de variation en fonction de t_0. Les erreurs commises sur d et sur l, modifiant tous les α dans un même rapport n'affectent pas la loi : $\alpha = f(t_0)$ quant à sa forme, la modification portant simplement sur la valeur numérique d'un facteur multiplicatif. Il en serait de même pour une erreur systématique qui affecterait de la même façon tous les θ.

Il y a donc lieu de définir deux erreurs : l'une indiquant la précision obtenue dans la détermination des coefficients de convection en valeurs absolues, l'autre chiffrant la précision avec laquelle on peut espérer établir les lois de variation et permettant de dire si une anomalie observée correspond à un phénomène réel ou peut être attribuée à de simples erreurs d'expériences.

Dans ce qui suit nous n'avons calculé que le coefficient linéaire $h = W/l\theta$, le coefficient de convection α s'en déduit facilement par division par πd, il y aurait alors lieu de tenir compte de l'erreur sur le diamètre qui est de l'ordre de 2 o/o. Les erreurs sur W et sur l s'évaluent immédiatement d'après la façon dont sont mesurées ces grandeurs, on peut admettre 2 o/oo sur chacune d'elles. Pour θ il y a lieu de distinguer le cas des faibles échauffements de celui des échauffements élevés. Pour les premiers l'erreur résulte de la superposition d'une erreur fortuite variable d'une expérience à l'autre, et d'une erreur systématique provenant du défaut dans le réglage initial du pont de Wheatstone de mesures [1], cette seconde erreur devra

[1] L'un des principaux avantages de la méthode de mesure employée par utilisation de l'équilibre d'un pont est de faire qu'une moitié de l'erreur sur θ soit la même dans toutes les expériences.

ou non être prise en considération suivant que nous nous proposerons de calculer l'une ou l'autre des deux erreurs définies ci-dessus. Pour les échauffements élevés des fluctuations se produisent dans la température du fil axial en raison de la turbulence des courants d'air de refroidissement, ce sont elles qui limitent la précision ; l'évaluation de l'erreur devient une opération d'ordre expérimental.

Compte tenu de ces divers éléments on peut admettre une précision de 1/2 o/o à partir de $\theta = 100°$, qu'il s'agisse de la détermination de h en valeurs relatives ou en valeurs absolues ; pour θ inférieur à 100°, on a :

	θ →	5	10	25	50
$\Delta h/h$	A →	0,04	0,025	0,012	0,01
	B →	0,02	0,012	0,006	0,005

A est l'erreur pour les valeurs absolues de h.
B est l'erreur pour les valeurs relatives de h.

LES RÉSULTATS

Nos expériences ont porté sur les sept valeurs suivantes de l'échauffement :

5° 10° 25° 50° 100° 200° et 400°.

Pour chacune d'elles nous avons fait une série de mesures au cours desquelles la température t_0 de l'air de refroidissement a varié d'une valeur supérieure voisine de 100° à une valeur inférieure variable suivant l'échauffement réalisé. L'ensemble de l'enceinte de protection et de la boîte chauffante gêne en effet la dissipation de la chaleur dégagée dans le fil axial, si bien que la température à la base du tube d'expériences est supérieure à la température ambiante, et ce d'autant plus que le fil axial est chauffé à température plus élevée. Pour $\theta = 10°$ le minimum de t_0 a été de 18°, mais pour $\theta = 400°$ il a atteint 42°. La limite supérieure de 100° est due à l'emploi du carton dans la confection de l'appareil. Il aurait été désirable que le champ des variations de t_0 ait été plus étendu [1], mais cela aurait demandé l'emploi d'un matériel plus compliqué, surtout pour opérer à des températures plus basses, et c'est de ce

[1] Il y a lieu de remarquer que les forces de convection ainsi que la conductibilité thermique de l'air sont sous la dépendance de la température absolue ; la variation de 20° à 100° centigrades ne doit pas être considérée comme multipliant la température par 5, mais le multiplicateur est égal au rapport des températures absolues, soit environ 1,25.

côté-là que l'expérimentation aurait présenté le plus grand intérêt, comme nous le verrons plus tard [1].

Nous avons représenté graphiquement les résultats expérimentaux sur les figures 4, 5 et 6. En abscisses sont portées les températures t_0, et en ordonnées les coefficients h en watts degré⁻¹ cm⁻¹. La figure 4

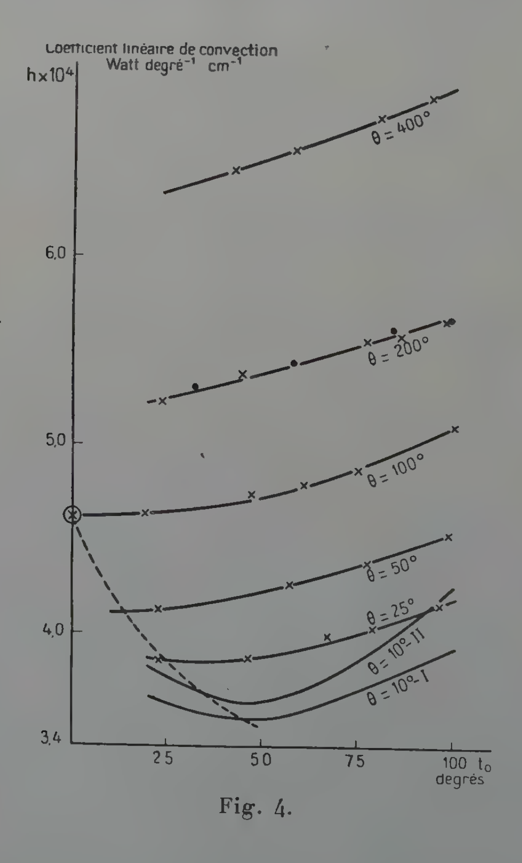


Fig. 4.

(1) Nous avons jusqu'à présent dans nos études sur la convection naturelle par les fils utilisé un matériel très simple; les appareils étaient construits par nous-mêmes dans leur presque totalité avec des matières premières et des objets faciles à se procurer. Nous pensons que la mise en jeu de procédés simples dans des études aussi peu avancées doit permettre la découverte de phénomènes intéressants, les moyens plus coûteux ne devant intervenir qu'après une première exploration.

porte sept courbes correspondant chacune à la valeur de θ qui est marquée en côte sur la courbe, pour θ = 10° nous avons tracé deux courbes,

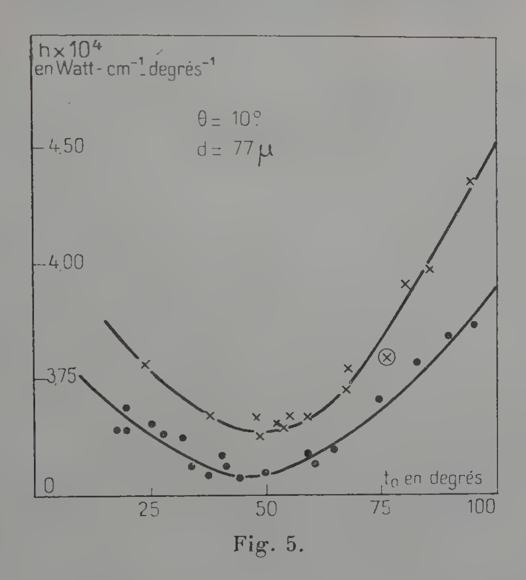


Fig. 5.

h x 10⁴
en Watt degres⁻¹ cm⁻¹
4,5
θ = 5°
4,0
3,5
3,0
25
50
75
100
t₀ en degrés

Fig. 6.

nous en verrons la signification. Les figures 5 et 6 correspondent aux échauffements de 10° et de 5°.

EXISTENCE DE DEUX SOLUTIONS AUX FAIBLES ÉCHAUFFEMENTS

Diverses singularités observées au cours des expériences qui ont été rapportées dans notre premier mémoire nous avaient conduit à penser que, aux faibles échauffements, le coefficient de convection h pouvait prendre deux valeurs nettement distinctes pour une même valeur de θ (et de t_0), ces deux valeurs correspondant à deux possibilités pour l'écoulement de l'air autour du fil. Autrement dit le problème de mécanique des fluides défini par les conditions aux limites de nos expériences admettrait deux solutions, l'une ou l'autre s'obtenant suivant les conditions initiales. C'est en vue de vérifier s'il en était bien ainsi que nous avons fait un grand nombre de mesures pour $\theta = 10^\circ$ et 5° (32 mesures dans le premier cas et 20 dans le second).

Le graphique de la figure 5, correspondant à $\theta = 10^\circ$, montre indubitablement que les points expérimentaux se situent au voisinage de deux courbes nettement séparées. Tous les points se situent autour de l'une ou de l'autre avec des écarts ne dépassant que rarement 1 o/o et restant presque toujours inférieurs, ce qui correspond bien à la précision des mesures indiquées à la ligne B du tableau I. L'écart entre les courbes est au contraire de 3 o/o au point où elles sont le plus rapprochées et atteint 9 o/o aux grandes valeurs de t_0. Enfin la disposition même des points est loin de celle qui résulterait d'une répartition au hasard dans l'intervalle entre les courbes.

Le graphique de la figure 6, correspondant à $\theta = 5^\circ$, donne lieu aux mêmes remarques. La courbe supérieure est cependant moins bien définie avec trois points aberrants. Ceci résulte-t-il d'une moins bonne définition du phénomène, ou d'erreurs expérimentales fortuites ? quoi qu'il en soit il ne semble pas douteux qu'il y ait deux courbes au moins.

Enfin au cours même des expériences nous avons à plusieurs reprises assisté au passage d'une solution à l'autre. L'équilibre des deux ponts étant presque réalisé, nous avons observé brusquement un déréglage important, et nous avons été amené à modifier de façon très notable les résistances prises sur les boîtes pour obtenir à nouveau l'équilibre.

La première idée qui nous était venue pour l'interprétation du phénomène était que les deux solutions correspondaient au passage classique en mécanique des fluides du régime visqueux au régime turbulent. Une discussion plus serrée, faite par M. Vernotte, et que nous avons présentée dans notre mémoire précédent, conduit à penser qu'aucun des deux régimes ne peut correspondre à un écoulement

visqueux et que l'on se trouve en réalité en présence de deux solutions également stables dans les conditions d'observation, du genre de celles mises en évidence par M. Camichel dans les écoulements hydrauliques.

EXISTENCE D'UN MINIMUM POUR LE COEFFICIENT h

Les figures 4, 5 et 6 montrent que pour les échauffements de 5° et de 10° le coefficient de convection passe par un minimum pour une certaine valeur de t_0, et ceci pour l'une comme pour l'autre des deux solutions. La courbe $\theta = 25°$ montre encore un minimum dans le champ des t_0 expérimentées, mais ce minimum est moins visible. Pour $\theta = 50°$ et 100° le minimum est en dehors des valeurs expérimentées de t_0 mais la forme de la courbe est non seulement compatible avec l'existence d'un minimum mais indique sa probabilité. C'est ainsi que pour $\theta = 100°$, la courbe $h = f(t_0)$ est représentée par la formule parabolique $h = 4{,}625 + 0{,}45 . 10^{-4} t_0^2$ avec une précision meilleure que 4 o/oo, c'est-à-dire avec toute la précision des expériences; par extrapolation on obtient donc le minimum à $t_0 = 0°$.

Le minimum est d'autant plus pointu que l'échauffement est plus faible, pour $\theta = 25°$ la courbe est déjà assez aplatie et elle le devient encore plus lorsque l'échauffement devient de 100°. Enfin le minimum se produit pour une température d'autant plus basse que θ est plus grand. Sur la figure 4 nous avons tracé en pointillé le lieu du minimum, sa position est donnée en fonction de θ par le tableau suivant :

θ	5	10	25	50	100
$(t_0)_m$	50	46	30	12	0

Bien qu'ayant expérimenté seulement dans un intervalle assez réduit pour les variations de t_0, nous avons eu la chance d'observer dans les limites de nos expériences un phénomène intéressant prévu par M. Vernotte. La perte de chaleur par convection, lorsque, pour un même échauffement, les valeurs absolues des températures s'élèvent, est en effet influencée par deux catégories de phénomènes produisant des effets en sens inverse : en premier lieu les forces produisant la convection diminuent plus rapidement que les résistances fluides qu'elles doivent équilibrer dans l'état de régime, d'où une diminution de la vitesse du fluide et par suite des échanges convectifs ; la diminution de la masse spécifique de l'air et par conséquent de sa chaleur spécifique par unité de volume agit dans le même sens. Les coefficients de convection diminueraient donc constamment lorsque augmente t_0 si la conductibilité calorifique de l'air ne subissait pas

un accroissement important qui, au contraire, favorise les échanges thermiques. La variation globale de h en fonction de t_0 à θ constant résulte du conflit entre ces tendances opposées et on comprend l'existence du minimum.

Nos expériences montrent que pour les valeurs élevées de θ ce minimum se produirait à des températures inférieures à 0°, il serait intéressant de prolonger les expériences vers cette région, on obtiendrait le minimum et on pourrait faire son étude dans les conditions de précision meilleure.

QUELQUES REMARQUES

Les deux solutions n'ont été observées que pour les échauffements de 5° et de 10°, après quoi il n'y a plus qu'une solution. D'après les résultats rapportés dans notre premier mémoire c'est la solution correspondant à la valeur la plus faible de h qui se transforme par continuité en la solution unique des échauffements plus élevés. Ceci est en accord avec le fait que pour $\theta = 10$ c'est le minimum de la courbe inférieure qui se trouve sur le lieu des minima tracés en pointillé.

Sur la courbe $\theta = 200$, les points marqués différemment correspondent à deux séries d'expériences indépendantes ; on voit que le phénomène se reproduit avec précision lorsqu'on reprend à plusieurs jours d'intervalle, chauffage, réglage, etc...

Si nous traçons sur un même graphique, et à la même échelle [1], les courbes inférieures des figures 5 et 6 (que nous dirons correspondre à la solution normale) on constate qu'elles se coupent aux deux points d'abscisses 23° et 70° ; à ces températures le coefficient de convection a donc la même valeur pour les échauffements de 5° et de 10°. Nos expériences ne permettent pas de savoir ce qu'il fait entre les deux mais il est à prévoir qu'il varie peu, ce qui pourrait correspondre au passage par un minimum en fonction de θ, pouvant correspondre ici encore aux deux tendances opposées dont nous avons parlé plus haut. Remarquons que l'égalité porte sur le coefficient de convection et non sur la chaleur dissipée, celle-ci est pour $\theta = 10$ le double de ce qu'elle est pour $\theta = 5$ (θ est multiplié par deux alors que h reste le même).

De l'ensemble de ces résultats il se dégage une impression de grande complexité mais qui se cantonne dans la région des faibles

(1) L'échelle des h est deux fois plus grande sur la figure 5 que sur la figure 6 ; ce choix est dû au fait que les expériences à 5° sont nettement moins précises qu'à 10°.

échauffements et des températures ambiantes relativement basses. Du moment où l'on se tient au-dessus de 0° et à des échauffements dépassant 50° à 100° le phénomène se simplifie et la variation du coefficient de convection est une sage croissance régulière et assez lente en fonction de t_0.

Si, sortant de cette région, on marche vers des échauffements de plus en plus faibles le phénomène se complique. mais il semble qu'il reste cependant bien défini. Par ailleurs la région des complications s'étend à des échauffements de plus en plus élevés lorsque t_0 diminue. Que se passerait-il si on expérimentait à des températures sérieusement inférieures à 0° ? *a priori* il ne semble pas qu'on ait intérêt à accumuler sans utilité complications et difficultés en un phénomène qui en présente déjà assez dans les conditions usuelles. La question peut se poser cependant si les fils ne présenteraient pas en exagéré des singularités se trouvant dans des appareillages utilisés à basse température. L'étude des fils pourait alors donner des renseignements sur le fonctionnement de ces appareillages et elle prendrait ainsi un intérêt qui ne serait pas purement académique.

CONVECTION NATURELLE PAR DEUX FILS PARALLÈLES

Soient F_1 et F_2 deux fils parallèles tendus horizontalement en air calme à la distance e l'un de l'autre, si nous les portons à une température t_1 supérieure à la température t_0 de l'air ambiant, il s'établit autour de ces fils des courants de convection d'où résulte la dissipation par seconde d'une quantité de chaleur W_1. Comme précédemment nous définirons le coefficient linéaire de convection par la formule : $h = W_1/l\theta$ en désignant par l la longueur totale de fil et par θ l'échauffement $t_1 - t_0$. Le problème qui se pose est celui de la variation de h lorsque e varie, tous les autres paramètres intervenant dans la définition du phénomène restant constants.

Nous avons expérimenté avec les méthodes de mesures décrites au paragraphe 2, et un appareillage très analogue dont la figure 7 donne un schéma. Les deux fils F_1 et F_2, distants de e mm., sont soudés sur des bornes B que supportent des joues J en ébonite, un système de glissières permet de faire varier e. Un tube de bristol, de 50 mm. de diamètre, protège les fils ; à la base de ce tube des fils P, tirés de la même bobine que les fils F, permettent la mesure de la température de l'air de refroidissement. L'échauffement est maintenu à une même valeur θ au cours des expériences où la distance des fils varie, par la méthode de pont décrite au paragraphe 2. La mesure de la puissance électrique déversée dans le fil, les corrections de perte de chaleur par

rayonnement et par les bouts, se font selon les procédés déjà décrits. Au cours d'une série d'expériences où θ restant constant e variait, il n'était pas possible pour bien des raisons d'obtenir une température t_0 toujours la même, on faisait donc deux mesures pour deux valeurs de t_0 voisines d'où l'on déduisait la variation $\Delta h/\Delta t_0$ de h pour une variation de 1° sur t_0, la connaissance de cette dérivée permettait d'effectuer une correction ramenant tous les résultats à une même valeur pour la température de l'air de refroidissement.

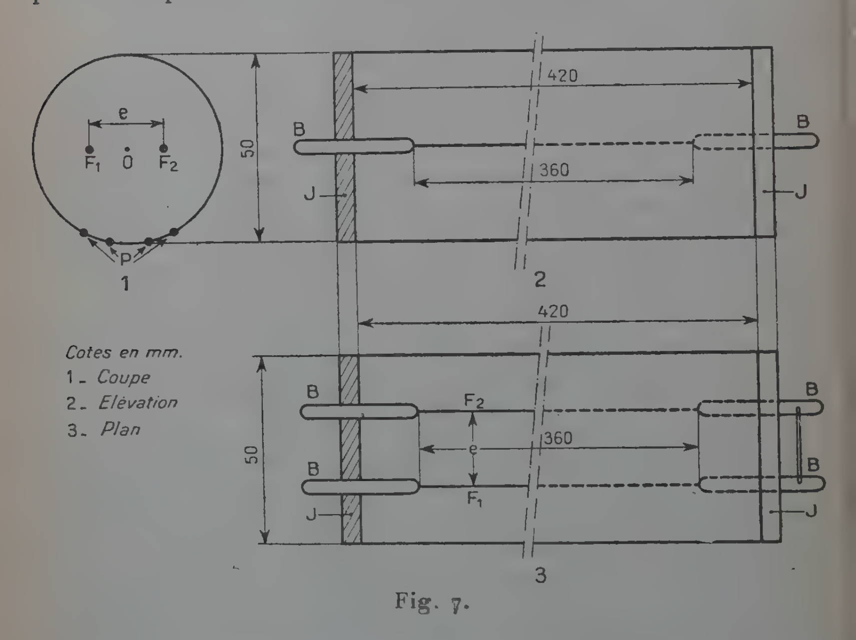


Fig. 7.

Voici quelques valeurs numériques sur les dimensions de l'appareillage :

diamètre : du fil 77,1 μ, du tube protecteur 50 mm. :

distance des joues : 420 mm., longueur totale de fil 720 mm. ;

distance des fils à leur maximum d'écart : 14 mm.

Le phénomène ainsi réalisé était bien défini, mais le diamètre de l'enceinte étant du même ordre de grandeur que la distance des fils à leur écart maximum il n'est pas certain que tous les résultats obtenus puissent s'étendre au cas d'un milieu ambiant de grandes dimensions.

Les expériences ont été faites pour les quatre valeurs de l'échauffement : 10° ; 50° ; 140° et 400°. Pour chacun d'eux la distance des fils a pris les valeurs : 1 ; 2 ; 4 ; 8 ; 14 mm.

La figure 8 traduit graphiquement les résultats.

Pour $\theta = 400°$, à la précision des expériences (1), les fils ne réagissent pas l'un sur l'autre; la quantité de chaleur dissipée par centimètre de longueur de chaque fil est indépendante de la distance à laquelle se trouve le second.

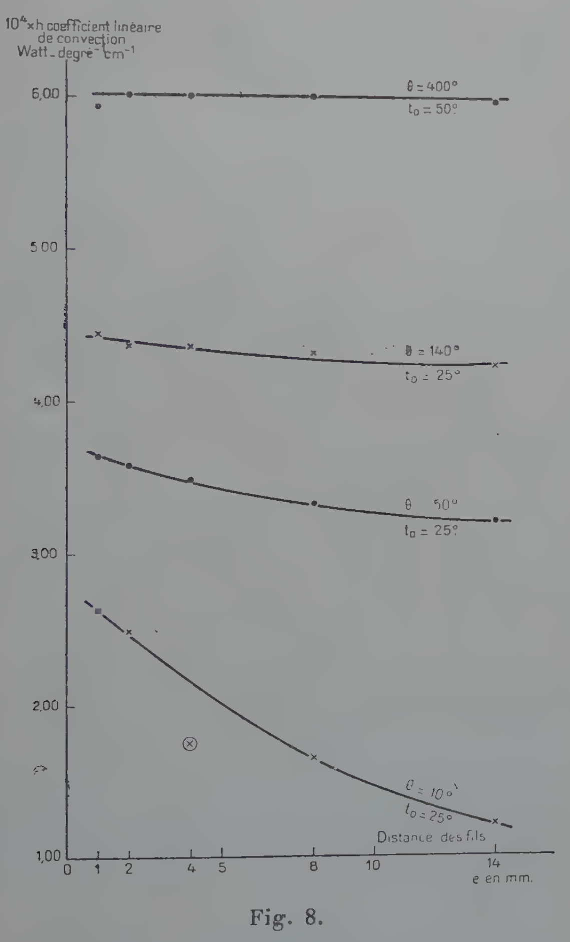


Fig. 8.

Pour les échauffements plus faibles la puissance dissipée s'accroît lorsque les fils se rapprochent ; chacun d'eux aide à la convection de l'autre, il crée un courant d'air qui place l'autre en quelque sorte dans des conditions de convection forcée.

(1) Cette précision est, comme dans la première partie de ce mémoire, de l'ordre de 1/2 0/0.

Pour les échauffements de 50° et 140° le coefficient de convection semble ne plus devoir diminuer beaucoup au delà de la distance de 14 mm., donc le coefficient de convection correspondant aux fils seuls est atteint pour cette distance. Le fait de disposer à 1 mm. d'un premier fil, un fil identique et identiquement chauffé, a donc pour effet d'augmenter son coefficient de convection de 11,6 o/o lorsque l'échauffement est de 50°, et de 4,6 o/o seulement lorsqu'il devient de 140°. Dans ce dernier cas l'accroissement de h est déjà faible, on conçoit que pour $\theta = 400°$ il ait pratiquement entièrement disparu.

Pour $\theta = 10°$ l'action mutuelle des fils est énorme à petite distance et elle conserve une valeur notable jusqu'à des distances importantes ; à l'écartement maximum expérimenté la courbe est encore loin d'avoir atteint son palier. Situés à 14 mm. l'un de l'autre, soit à 180 fois leur diamètre, les fils réagissent encore l'un sur l'autre et, lorsque leur distance passe de 14 à 1 mm., le coefficient de convection est multiplié par 2,18. Ces effets sont liés à l'accroissement très rapide que subit le coefficient de convection lorsque, de très petit, l'échauffement devient un peu plus grand. Dans les conditions envisagées les faibles variations de température mises en jeu ne produisent que de faibles différences de densité et partant des vitesses infimes pour les courants fluides ; la moindre cause d'augmentation de ces vitesses produit alors un effet important sur la dissipation de chaleur, que cette cause réside en une agitation d'ordre mécanique, en l'approche d'un autre fil chaud, ou en une faible augmentation de la température du fil en expérience. Le résultat expérimental trouvé d'une interaction importante et s'étendant au loin lorsque les courants de convection sont très faibles, alors que cette interaction disparaît pour des courants intenses, n'en présente pas moins de l'intérêt.

Notons pour terminer la présence d'un point très aberrant sur la courbe $\theta = 10°$, il peut être le résultat d'une faute expérimentale grossière, mais il peut aussi correspondre à une de ces solutions singulières, pour l'écoulement fluide, que nous avons mis en évidence aux faibles échauffements ; chaque point de la courbe résulte en effet de deux mesures indépendantes et pour le point en question ces mesures sont concordantes pour le situer à l'endroit où nous l'avons fait figurer.

RÉSUMÉ

Etude expérimentale de la dissipation de chaleur par convection naturelle pour un fil chaud tendu horizontalement en air calme suivant l'axe d'une enceinte cylindrique. Pour plusieurs valeurs de l'échauffement θ nous avons déterminé la loi de variation du coefficient de convection en fonction de la température t_0 de l'air de refroi-

dissement. Dans une première partie nous décrivons l'appareillage et exposons les méthodes de mesures ; nous indiquons ensuite par graphiques les résultats de ces mesures. Discutant des valeurs numériques obtenues nous mettons en évidence deux particularités du phénomène : *a*) aux faibles échauffements le coefficient de convection prend deux valeurs bien définies et nettement distinctes pour un même couple des valeurs des paramètres déterminants θ et t_0 ; *b*) à échauffement constant le coefficient de convection passe par un minimum pour une certaine valeur de t_0.

Dans une deuxième partie nous étudions la convection naturelle par deux fils parallèles horizontaux. En règle générale ces fils s'aident mutuellement dans leur dissipation de chaleur, la dissipation étant plus grande pour chacun d'eux lorsqu'il est en présence de l'autre que lorsqu'il est seul. Cet effet très important et s'étendant à grande distance lorsque l'échauffement est petit (plus de 14 mm. soit 180 fois le diamètre pour $\theta = 10°$) s'atténue lorsque θ augmente pour disparaître pratiquement lorsqu'il est assez grand (pour $\theta = 400°$ action nulle à 1 mm. de distance).

STRUCTURE ÉLECTRONIQUE DES IMPURETÉS DANS LES MÉTAUX (1)

Par J. FRIEDEL

SOMMAIRE. — La configuration des électrons autour d'une impureté est étudiée ici de trois points de vue différents qui correspondent respectivement aux approximations, classiques en chimie, des orbitales moléculaires, des orbitales de valence et des configurations ioniques.

Dans l'approximation des *orbitales moléculaires*, les électrons de valence de l'impureté sont traités sur le même pied que les électrons de conduction du métal. Mott a souligné que les impuretés de plus forte valence doivent attirer un excès d'électrons de conduction, de façon à faire écran à leurs charges plus fortes. Nous montrons que la méthode d'étude de Mott suppose valable l'approximation classique de Born et est donc surtout appropriée à l'étude des électrons rapides. Nous étendons le calcul de Mott aux concentrations finies d'impuretés. Nous montrons que jusqu'à de fortes concentrations les impuretés conservent un écran presque parfait et que le niveau de Fermi ne se déplace que peu. Dans l'approximation de Born où ce calcul est fait, la bande de conduction de l'alliage a la même forme que celle du métal pur, ce qui justifie le modèle de bandes rigides fréquemment employé pour les alliages.

Nous libérant ensuite de l'approximation de Born, nous cherchons à satisfaire exactement la condition d'écran. Le potentiel ainsi obtenu est un peu différent de celui de Mott et donne un meilleur accord avec l'expérience pour la résistivité due aux impuretés. L'approximation de Born donne des résultats intermédiaires entre ceux que nous obtenons pour des électrons et pour des trous positifs ; elle convient à l'étude des alliages d'Hume Rothery.

L'énergie des électrons lents et de l'écran n'est pas facile à étudier par les orbitales moléculaires. Nous montrons que les *orbitales de valence* donnent souvent des résultats raisonnables. L'impureté est alors supposée dissoute à l'état d'atome neutre si elle est en position interstitielle, ou comme un ion de même charge que l'ion du métal auquel elle est substituée. Son énergie de dissolution dépend surtout de son interaction de Coulomb avec les électrons de conduction du métal.

Nous étudions l'hydrogène interstitiel. Puis nous montrons que l'atome excité par une absorption X peut être traité comme une impureté en substitution. L'étude générale des alliages de substitution fait intervenir des corrections nouvelles, dont le facteur de taille. Les énergies de disso-

(1) Thèse présentée le 21 avril 1953 à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques.

lution calculées semblent indiquer que quand le métal de base est noble (cuivre, argent, or), il faut tenir compte de l'interaction de Van der Waals des ions du métal. Aux concentrations finies, la variation du niveau de Fermi est mise en rapport avec la variation de l'énergie de dissolution et l'interaction des impuretés entre elles.

Enfin si l'impureté a plus que sa part d'électrons liés autour d'elle, nous dirons qu'elle est dans une *configuration ionique*. Les éléments de transition dissous dans les métaux mono ou polyvalents sont dans un tel état. Les absorptions X de certains métaux légers peuvent aussi s'étudier dans cette approximation.

INTRODUCTION

Objet de cette étude.

Dans le domaine complexe des alliages, nous nous limitons ici aux impuretés ; le soluté est supposé en concentration assez faible pour que ses atomes n'interagissent que peu entre eux. Même ainsi réduit, le problème présente deux difficultés qui rendent nécessaires des approximations. La présence de l'impureté détruit la symétrie de translation du métal. Surtout, on a à traiter au moins tous les électrons de conduction du métal et les électrons de valence de l'impureté. Faute de pouvoir les étudier individuellement, on fait des moyennes au sens de Hartree ; et les méthodes diffèrent suivant la façon dont ces moyennes sont faites. Nous précisons sur un exemple les trois solutions envisagées. Notre objet sera de comparer leurs mérites.

L'impureté. Notion d'écran.

Prenons comme exemple simple le cuivre, métal monovalent dont la bande de conduction est représentée figure 1 par le continuum d'énergie E_0E_M. Nous introduisons en un point du métal un proton H^+. Les électrons de conduction du cuivre vont être perturbés par le champ électrique introduit, et fournir un écran à la charge du proton. *L'écran doit être total*, sinon un champ coulombien subsisterait à grandes distances dans le métal, ce qui n'est évidemment pas possible (cf. I).

Cet écran peut être de diverses natures. On peut tout d'abord imaginer que les électrons de conduction, attirés par le champ du proton, vont passer un temps un peu plus long à son voisinage que dans le reste du métal. C'est dire que leurs fonctions d'onde ont des amplitudes plus grandes près du proton, et une accumulation de charge se produira de ce fait dans la bande de conduction (fig. 1*a*).

Si par contre nous introduisons le proton avec l'écran d'un élec-

tron 1*s* lié (fig. 1*b*), le potentiel de l'atome d'hydrogène ainsi formé, beaucoup moins attractif que celui du proton, ne perturbera guère les électrons de conduction. Peut-être peut-on négliger cette perturbation.

Enfin l'hydrogène peut exister à l'état d'ion négatif H^- dans l'atmosphère [49]. Si nous introduisons un tel ion dans le métal, les électrons de conduction doivent être repoussés à son voisinage, de façon à fournir un écran à sa charge négative (fig. 1*c*).

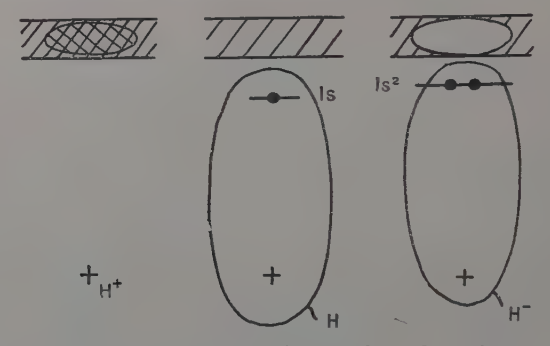


Fig. 1. — Hydrogène dissous dans le cuivre.
a) o. m. ; *b*) o. v. ; *c*) c. i.

Ces trois types de configurations se rencontreront dans toute la suite de cet exposé ; il serait donc commode de leur donner des noms. Par analogie avec d'autres domaines de la chimie [67] nous dénommerons la première (fig. 1*a*) solution des « orbitales moléculaires » (o. m.) parce que les électrons sont dans des orbitales communes à tous les atomes. Nous appellerons de même la seconde (fig. 1*b*) solution des « orbitales de valence » (o. v.), parce que les deux systèmes, impureté et métal, conservent chacun leurs électrons dans des orbitales propres. Enfin la troisième solution (fig. 1*c*) pourrait s'appeler « configuration ionique » (c. i.), parce que l'hydrogène a plus que sa part d'électrons liés. Nous discutons brièvement ces trois solutions.

Comparaison des trois solutions.

La configuration réelle des électrons ne peut en fait se classifier de façon aussi précise du fait des importants termes de *corrélation*. L'échange et la corrélation coulombienne sont tous deux inclus dans cette dénomination. Il y aura évidemment tendance à « configuration ionique » quand un métal électropositif comme le lithium absorbe une impureté fortement électronégative comme le chlore. Il y a au contraire tendance à former des « orbitales moléculaires » quand les

deux éléments ont des électronégativités comparables, cuivre et argent par exemple. Mais les cas réels semblent plus souvent intermédiaires entre deux de ces approximations, chacune étant plus appropriée à un certain domaine de phénomènes.

Ainsi, dans l'approximation des orbitales moléculaires, tous les électrons de conduction sont traités dans le même potentiel, celui des électrons du sommet de la bande. Si ce potentiel est assez fort pour accepter des états liés en dessous de la bande de conduction, on obtient une configuration apparemment analogue à la configuration ionique de la figure 1*c*. La différence vient de ce qu'ici les électrons liés éventuels sont traités dans le *potentiel dû à leur propre charge.* Cette approximation sous-estime donc les effets de corrélation quand il y a des états liés ou même simplement des déplacements de charge importants dans la bande de conduction. La corrélation est particulièrement importante pour les électrons lents, qui produisent la partie centrale de l'écran, donc le terme principal dans l'énergie du système. L'approximation n'est donc pas très appropriée pour les calculs d'énergie. Elle convient plutôt pour l'étude des électrons rapides et de la zone externe de l'impureté, donc pour les propriétés thermiques, électriques, magnétiques des électrons, les propriétés élastiques des impuretés, les interactions entre impuretés, les limites de phases, etc...

Dans les deux autres approximations les électrons liés sont traités dans le potentiel de l'impureté, puis les électrons de conduction dans celui de l'impureté et des électrons liés. On ne tient compte ainsi qu'une fois des interactions entre électrons liés et de conduction. Un traitement de ce genre ne se justifie évidemment que si les électrons liés ne débordent que peu sur les atomes voisins et si les électrons de conduction ont une densité assez faible. Les résultats seront bons surtout pour la zone centrale de l'impureté. Les orbitales de valence sont particulièrement appropriées pour calculer l'énergie du système, du fait qu'il n'y a pas d'accumulation de charge dans la bande de conduction, donc pas de correction de corrélation importante.

En conclusion, la première approximation est surtout adaptée à l'étude des électrons rapides et des perturbations du système ; les deux autres, à celle des électrons lents et de l'énergie totale. Nous abordons maintenant l'étude détaillée de ces solutions.

I. — ORBITALES MOLÉCULAIRES

Dans cette approximation, tous les électrons sont traités dans le même potentiel V. En fait, on simplifie encore le problème et traite les électrons comme libres, diffractés par le champ du « potentiel

perturbateur » V_P obtenu en retranchant du potentiel réel V le potentiel périodique V_R de la matrice :

$$V_P = V - V_R. \tag{1}$$

Dans le cas de la figure 1*a* par exemple, V_P est fourni par le proton et son écran. Une telle approximation est sujette à des critiques que nous développerons plus loin.

Le but de ce chapitre est de calculer la forme « stable » (self consistent) du potentiel V_P. Mott [54] a le premier étudié le cas d'une impureté isolée par une méthode approchée que nous étendons aux concentrations finies d'impuretés. Cette méthode, fondée sur l'approximation de Born, est équivalente aux modèles de bandes rigides. Dans le cas des dilutions infinies, elle peut être assez simplement rendue plus précise et donne alors de bons résultats pour la résistivité due aux impuretés. Les deux perfectionnements apportés à la formule de Mott utilisent une relation mathématique que nous rappelons.

Solution de Mott.

L'existence même d'un écran et sa constitution furent étudiées en premier lieu par Mott [54], par une méthode approchée que nous rappelons et étendons aux concentrations finies d'impuretés.

Nous traitons le métal comme un gaz de Fermi contenant N_0 électrons par unité de volume. Si nous introduisons en un point de ce gaz une charge fixe Z, la densité électronique à distance r de cette charge prend une nouvelle valeur N sous l'influence du potentiel perturbateur V_P. V_P est la somme des potentiels dus à la charge Z et au changement de densité $N - N_0$ dans le gaz. Il est relié à ce dernier par l'équation de Poisson :

$$\Delta V_P(r) = -4\pi(N - N_0). \tag{2}$$

Pour un gaz de Fermi, on a [1] :

$$N_0 = (1/3\pi^2)(2\mu E_M)^{3/2} \tag{3}$$

si E_M est l'énergie maxima des électrons du métal et μ leur masse effective. Nous prenons pour N l'*approximation de Thomas et Fermi :*

$$N \simeq (1/3\pi^2)[2\mu(E'_M - V_P)]^{3/2},$$

(1) Nous utilisons dans cette étude les unités atomiques de Hartree [27] : $\hbar = e = m = 1$.

où E'_M est l'énergie maxima dans l'alliage, et supposons V_P *beaucoup plus petit que* E_M et E'_M. D'où :

$$\Delta V_P(r) \simeq q^2(E_M)(V_P + E_M - E'_M), \tag{4}$$

avec :

$$q^2(E_M) = 4\mu k_M/\pi. \tag{5}$$

où k_M est le moment maximum :

$$k_M = (2\mu E_M)^{1/2}.$$

Dilutions infinies. — La neutralité du système donne $V_P = \frac{dV_P}{dr} = 0$ à distance r infinie. V_P doit de plus tendre vers $-\frac{Z}{r}$ à l'origine. La solution cherchée de l'équation (4) est alors :

$$V_P \simeq -\frac{Z}{r} \exp(-qr) \tag{6}$$

où q est donné par l'équation (5). $E'_M = E_M$, car l'énergie maxima E_M ne peut être changée de façon appréciable par l'introduction d'une impureté.

Le potentiel coulombien $-Z/r$ de la charge Z est donc coupé à faible distance par un terme exponentiel. Comme en général μ et k_M sont de l'ordre de l'unité atomique, q^{-1} est de l'ordre de l'angström : *l'écran se produit juste sur l'impureté et ne déborde guère sur les atomes voisins.*

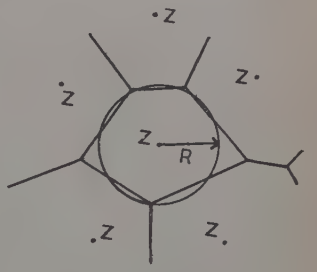


Fig. 2. — Concentration finie d'impuretés.

Concentrations finies. — Si plusieurs impuretés, représentées par des charges Z, sont présentes, nous découpons le métal en polyèdres contenant chacun une impureté en son centre (fig. 2); nous remplaçons chaque polyèdre par une sphère de même volume, et supposons en première approximation que toutes les sphères ont sensiblement *même rayon* R [1].

La neutralité des sphères donne :

$$V_P(R) = \frac{dV_P}{dr}(R) = 0,$$

et V_P tend vers $-Z/r$ quand r tend vers zéro.

[1] Une étude plus poussée tiendrait compte de ce que les polyèdres ne sont pas des sphères et n'ont pas tous, par suite du désordre, le même volume.

La solution de l'équation (5) est alors [1] :

$$V_P \simeq E'_M - E_M - \frac{Z}{r} \cdot \frac{qR \operatorname{ch} q(R-r) - \operatorname{sh} q(R-r)}{qR \operatorname{ch} qR - \operatorname{sh} qR} \tag{7}$$

avec :

$$E'_M - E_M \simeq Zq/(qR \operatorname{ch} qR - \operatorname{sh} qR).$$

Nous pouvons interpréter ces formules de la façon suivante. Aux concentrations finies, l'écran d'une charge Z doit se produire dans un polyèdre, il est plus concentré qu'aux dilutions infinies, donc fournit un potentiel V_P moins attractif (pour $Z > 0$) ou moins répulsif

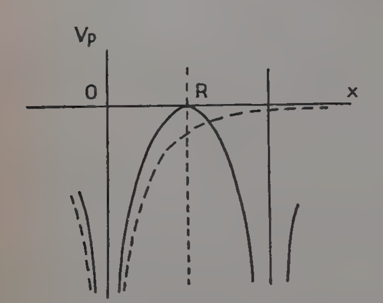


Fig. 2 *bis*. — Potentiel V_P aux concentrations finies (pour $Z > 0$). En pointillé, potentiel V_P pour une dilution infinie.

(pour $Z < 0$), comme l'indique la figure 2 *bis*. La charge déplacée au-dessous de E_M dans un polyèdre est donc inférieure à Z, et le complément Z_e doit être obtenu par le déplacement $E'_M - E_M$ du niveau de Fermi :

$$Z_e = (4R^3/q\pi)(k'^3_M - k^3_M) \simeq (q^2R^3/3)(E'_M - E_M). \tag{8}$$

La figure 3 donne la variation de $E'_M - E_M$ avec la concentration c pour le cuivre ($q = 1,15$) et $Z = 1$. La courbe a une pente horizontale à l'origine, un fait général. La figure 4 donne la variation de Z_e en fonction de $(qR)^{-3} = (qr_s)^{-3}c$, où r_s est le rayon de la sphère atomique du métal. Pour les métaux usuels, $(qr_s)^{-3} \simeq 0,1$ à $0,5$.

Nous allons montrer que la méthode employée ici est en fait fondée sur l'approximation de Born et que, dans cette approximation, la charge déplacée dans un polyèdre au-dessous de E_M s'écrit :

$$\frac{4}{\pi} k_M \int_0^R V_P r^2 dr,$$

ce qui donne bien $Z - Z_e$ quand on remplace V_P par sa valeur (7) (cf. formules 14, 15). Le potentiel V_P obtenu ici est donc « stable »

(1) Cette solution est l'analogue simplifiée de la méthode de Slater et Krutter pour les métaux purs [83]. Comme dans celle-ci, une correction de corrélation serait utile. Cf. II.

(self consistent) en ce sens que dans chaque polyèdre la charge Z de l'impureté a un écran $(Z - Z_e) + Z_e = Z$. Shinohora [74] a également prouvé ce résultat pour R infini par une méthode différente. Nous rappelons tout d'abord une relation mathématique simple qui sera utile dans la suite.

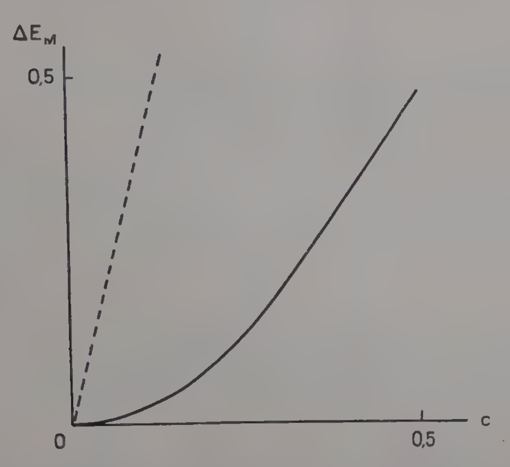


Fig. 3. — Variation $\Delta E_M = E'_M - E_M$ du niveau de Fermi dans le cuivre (en eV) pour $Z = 1$. En pointillé, variation de l'énergie cinétique.

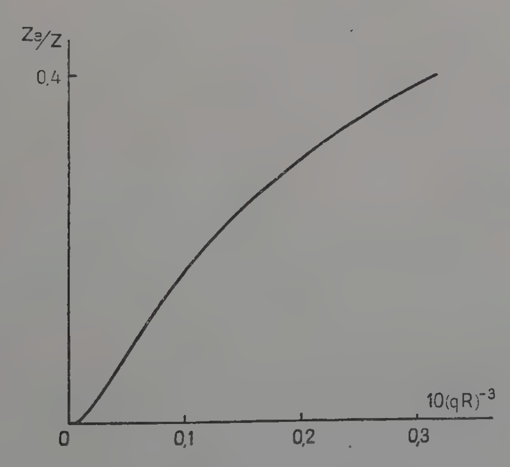


Fig. 4. — Variation du défaut d'écran Z_e.

Relation entre la charge d'écran et les déphasages.

Nous partons de l'équation de Schrœdinger des électrons libres dans le champ d'une perturbation V_P donnée *a priori* :

$$\Delta\Psi + 2\mu(E - V_P)\Psi = 0. \qquad (9)$$

Nous allons établir une relation simple entre la charge déplacée par V_p et les déphasages des fonctions d'onde Ψ (formule 11, cf. [17]).

Nous définissons tout d'abord les déphasages η_l. Suivant un procédé classique, nous enfermons le gaz de Fermi dans une boîte sphérique de grand rayon R, dont les parois ont un potentiel infini. Cette boîte schématise la surface du métal. Nous supposons l'impureté, c'est-à-dire le potentiel perturbateur, en son centre (fig. 5*b*). Si V_p a une symétrie sphérique, les états quantifiés Ψ du gaz de Fermi peuvent se mettre sous la forme $\Psi = \varphi_l(k,r)P_l(\cos\theta)$, où P_l est l^e polynôme de Legendre et θ l'angle de **r** avec le « moment » **k** ($k = \sqrt{2\mu E}$).

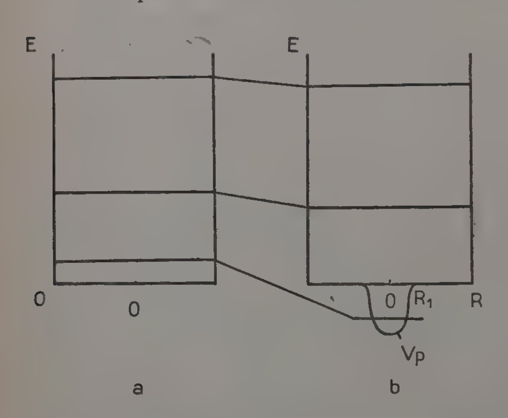


Fig. 5. — Déplacement des états quantifiés $s(l = 0)$ dans une boîte sphérique.

Les « composants sphériques » φ_l vérifient :

$$\partial^2(r\varphi_l)/\partial r^2 + 2\mu[E - V_P - l(l+1)/2r^2]r\varphi_l = 0$$

et leurs moments k sont donnés par :

$$\varphi^l(k,R) = 0.$$

On a ainsi toutes les solutions du problème, car ces fonctions forment un ensemble complet. Si V_P s'annule au delà d'une distance R_1, φ_l doit évidemment se raccorder pour $r > R_1$ à une fonction du type $r^{-\frac{1}{2}}[AJ_{l+\frac{1}{2}}(k,r) + BJ_{-l-\frac{1}{2}}(k,r)]$, où les J sont des fonctions de Bessel,

A et B deux constantes. On voit facilement qu'une telle fonction prend pour $kr \gg l\pi/2$ la forme asymptotique :

$$\text{const } r^{-1} \sin\left(kr - \frac{l\pi}{2} + \eta_l\right).$$

La constante η_l est ce que l'on appelle le « déphasage à l'infini » de la l^e composante ; et le terme $\frac{l\pi}{2}$ est introduit de façon que η_l soit nul quand V_P disparaît (cf. [58]).

Supposons maintenant que R *tend vers l'infini*. En remplaçant φ_l par sa forme asymptotique, on obtient la condition :

$$k \simeq R^{-1}\left[\frac{1}{2}\, l\pi + \lambda\pi - \eta_l(k)\right],\ \lambda \text{ entier.}$$

Cette formule met en évidence les points suivants :

1) Par suite de la perturbation V_P, *la densité des états* l *dans l'espace des* k, $d\lambda/dk$, *n'est pas une constante*. Le nombre d'états l introduits par la perturbation entre les « moments » k_1 et k_2 est égal à :

$$[\lambda_1 - \eta_l(k_1)/\pi] - \lambda_1 - [\lambda_2 - \eta_l(k_2)/\pi] + \lambda_2 = \frac{1}{\pi}[\eta_e(k_2) - \eta_l(k_1)].$$

Donc la charge totale introduite dans le gaz est, en sommant sur les spins σ et les états l, $\frac{1}{\pi}\sum_\sigma \sum_l (2l+1)[\eta_l(k_2) - \eta_l(k_1)]$.

2) Un décompte des nœuds de la fonction φ_l montre immédiatement (cf. Mott et Massey, *loc. cit.*) que si V_p admet n_l états liés de symétrie l et d'énergie négative, pouvant accommoder $2(2l+1)n_l$ électrons, on a :

$$\eta_l(0) = n_l\pi. \tag{10}$$

Nous pouvons donc dire, généralisant la formule précédente, que la charge totale introduite dans le gaz, *au-dessous de l'énergie* $k^2/2\mu$ (états liés compris), est :

$$n = \frac{1}{\pi}\sum_\sigma \sum_l (2l+1)\eta_l(k). \tag{11}$$

3) La charge n ainsi introduite est localisée dans la région où V_P n'est pas nul ; c'est bien l'*écran* cherché. On sait en effet [44] que dans la région $R_1 < r < R$ où V_P est nul, et tout au moins si $k(R - R_1) \gg 1$, la densité des états dans l'espace des k, donc la charge totale du gaz au-dessous d'un moment donné k, est indépendante des conditions aux limites imposées. Elles ne dépendent donc pas de l'introduction de V_P et le changement de charge n doit s'effectuer dans la région $r < R_1$ où $V_P \neq 0$.

Notons que, si V_P contenait un terme de Coulomb en $1/r$, les

déphasages η_l seraient tous infinis [59] ; V_P serait assez attractif pour accepter une infinité d'électrons liés au-dessous de la bande de conduction, qui se viderait complètement. La charge de l'impureté doit donc avoir un écran *total*.

Enfin quand on introduit dans le gaz une impureté de charge Z et Z électrons, l'énergie maxima E_M reste rigoureusement *constante*. Le nombre n de places supplémentaires offertes au-dessous de E_M dans le gaz est en effet juste égal au nombre Z d'électrons supplémentaires introduits.

Ces deux derniers points restent vrais tant que les impuretés ne sont pas à concentration suffisante pour interagir.

Approximation de Born.

Nous montrons que la méthode précédente repose sur l'approximation de Born, et est par suite équivalente aux schémas de bandes rigides. Nous étudions enfin la nature de l'écran aux concentrations finies.

Calcul du potentiel V_P. — Nous montrons que l'équation (4) pour V_P peut se déduire dans l'approximation de Born de l'équation (11).

Dans l'approximation de Born, les déphasages η_l sont liés au potentiel V_P qui les crée par [60] :

$$\eta_l(k) \simeq -\pi\mu \int_0^\infty V_P J^2_{l+\frac{1}{2}}(kr')r'dr', \tag{12}$$

où J est une fonction de Bessel et k le moment de l'électron considéré.

Les déphasages dus aux différentes parties de V_P sont donc additifs, et celui dû à la partie de V_P compris entre o et r s'écrit :

$$\eta'_l(k, r) \simeq -\pi\mu \int_0^r V_P J^2_{l+\frac{1}{2}}(kr')r'dr'. \tag{13}$$

La charge déplacée entre o et r et au-dessous du moment R sera donc dans cette approximation, d'après (11) :

$$n'(k, r) \simeq \frac{1}{\pi} \sum_\sigma \sum_l (2l+1)\eta'_l(k, r).$$

Tenant compte de la relation [92] :

$$1 = \sum_l (2l+1)(\pi/2kr) J^2_{l+\frac{1}{2}}(kr),$$

on a finalement :

$$n'(k, r) \simeq -\frac{4}{\pi} k\mu \int_0^r V_P(r') r'^2 dr'. \tag{14}$$

La variation de densité des électrons est due au déplacement $E'_M - E_M$ du niveau de Fermi et aussi au déplacement de charge n' :

$$N(E'_M, r) - N_0(E_M) = N_0(E'_M) - N_0(E_M) + \frac{1}{4\pi r^2}\frac{dn'}{dr}.$$

Le remplacement de N_0 et n' par leurs valeurs (3) et (14) dans l'équation de Poisson (2) donne bien l'équation (4) pour V_P.

Equivalence avec les schémas de bandes rigides. — La méthode de Born pour l'étude de la diffraction des électrons est une méthode d'approximations successives où l'on part d'ondes planes pour les électrons. L'énergie des fonctions d'onde varie donc d'une quantité *constante* E_0, plus des termes du second ordre dans l'approximation, qui peuvent donc être négligés :

$$\Delta E = \int V_P e^{i\mathbf{k}.\mathbf{r}} e^{-i\mathbf{k}.\mathbf{r}} d\tau + O_2 \simeq \int V_P d\tau = E_0.$$

La bande de conduction de l'alliage doit donc avoir la *même forme* que celle du métal pur, et être simplement décalée en bloc d'une énergie E_0 (fig. 6). La figure 6 donne en pointillé la variation

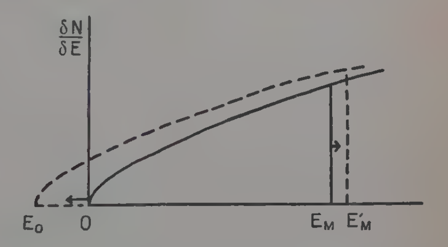


Fig. 6.
Schéma de bande rigide pour un alliage.

d'énergie « cinétique » de l'alliage $(E'_M - E_0)$, en admettant que la bande garde une forme rigide. La différence des deux courbes donne la variation E_0 d'énergie « potentielle ».

Ce déplacement en bloc de la bande se vérifie directement de la façon suivante. Si $\overline{N}(E)$ est la densité des électrons d'énergie inférieure à E dans un tel modèle et N_0 celle du métal pur, on a :

$$(\overline{N} - N_0)_E = \frac{1}{3\pi^2}\left\{[2\mu(E + E_0)^{3/2}] - (2\mu E)^{3/2}\right\}.$$

E_0 est tel que :

$$\frac{3}{4\pi R^3}(Z - Z_e) = \frac{1}{3\pi^2}\left\{[2\mu(E_M + E_0)]^{3/2} - (2\mu E_M)^{3/2}\right\},$$

où Z_e est donné par (8). Aux faibles concentrations (où ZR^{-3}, donc E_0, sont petits) et pour des énergies E assez grandes, un développement

des deux crochets par rapport à E_0 donne pour la charge déplacée au-dessous de E dans un polyèdre :

$$n'(k, R) = \frac{4\pi R^3}{3}(\bar{N} - N_0)_E \simeq (Z - Z')(k/k_M)^3. \qquad (15)$$

C'est précisément la valeur que l'on trouve en remplaçant V_F par sa valeur (7) dans l'équation (14). Cette démonstration n'est valable que dans les limites de l'approximation de Born, pour des concentrations assez faibles et des énergies assez fortes (qR et $kR \gg 1$).

Le modèle de bandes rigides a été fréquemment utilisé dans l'étude des alliages, depuis son emploi par Jones [37] pour les composés intermétalliques et par Mott [53] pour les alliages des métaux de

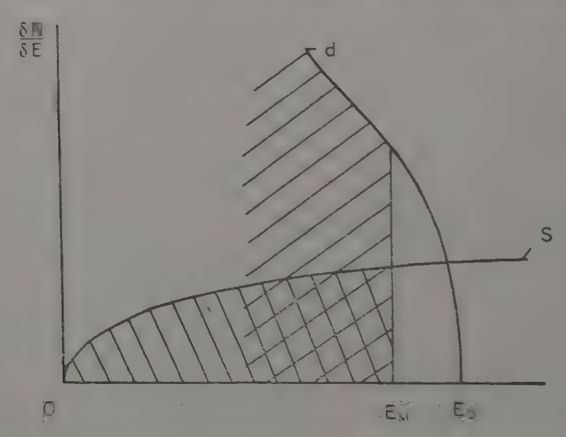


Fig. 7. — Chevauchement des bandes *s* et *d* dans le nickel, d'après Mott.

transition. Il est intéressant de voir que ce modèle et celui d'écran localisé développé par Mott [54] sont deux applications, l'un pour les énergies, l'autre dans l'espace, de l'approximation de Born. *L'emploi des deux modèles doit donc mener aux mêmes conclusions.*

Les alliages NiCu [1] illustrent ce point. Mott [53] suppose que dans le nickel pur une bande $3d$ presque pleine (avec 0,6 trou positif par atome) et une bande $4s$ presque vide (avec 0,6 électron par atome) se recouvrent (fig. 7).

La substitution d'un ion Cu^+ à un atome de nickel introduit une charge positive, qui doit recevoir un écran. Celui-ci est obtenu par attraction des électrons *s* et répulsion des trous *d*, donnant un cer-

[1] Par BA, nous entendons A dissous dans B.

tain potentiel V_P. La formule (14) montre que les charges d'écrans fournis par les électrons et les trous sont en proportion :

$$\frac{n_s}{n_d} = \frac{k_s \mu_s}{k_d \mu_d} = \left(\frac{\partial N_s/\partial E}{\partial N_d/\partial E}\right)_{E_M}, \qquad (16)$$

où k_s, μ_s et k_d, μ_d sont les moments maxima et les masses effectives des électrons et des trous positifs. Aux faibles concentrations, le niveau de Fermi E_M reste fixe et n_s, n_d sont les nombres d'électrons s et d supplémentaires introduits avec les ions Cu^+. La formule (16) montre qu'ils sont proportionnels aux densités d'état s et d au niveau de Fermi. C'est exactement ce que prévoit un modèle de bandes rigides. Dans le cas considéré, $k_s = k_d$ et $\mu_d \gg \mu_s$, donc $n_d \gg n_s$: on peut dire que l'électron de valence $4s$ introduit avec un ion Cu^+ va remplir de préférence un trou de la bande d, ou bien que la charge de l'ion Cu^+ repousse surtout les électrons d.

Nous voyons de plus que les *atomes de cuivre*, qui repoussent fortement les trous d, *ont une couronne* d *pleine*. Le fait général que les impuretés telles que Cu, Zn, Ag ... se dissolvent dans le nickel, le palladium, le platine, etc., avec leur couronne d pleine — ou, comme l'aluminium, sans couronne d — n'apparaissait pas clairement dans le modèle de bandes rigides, et fut assez controversé (cf. [30], [63], [93]). Il est en accord avec l'augmentation sensible de la résistivité des alliages PdAg quand on atteint des concentrations d'argent suffisantes pour que les électrons de conduction s soient diffractés par les atomes de palladium dans les trous de leurs couronnes d [57].

Dans l'alliage NiFe, les deux trous $3d$ créés par substitution d'un atome de fer restent de même localisés sur l'atome d'impureté. Au-dessous du point de Curie, les trous positifs du nickel fournissent un écran de spin parallèle aux leurs. Les atomes de nickel conservent donc un moment magnétique de 0.6 μ_B (μ_B magnéton de Bohr), tandis que les atomes de fer prennent un moment $2 + 0{,}6 = 2{,}6\ \mu_B$. Les valeurs mesurées par diffraction de neutrons sur Ni_3Fe désordonné [75] sont effectivement $(0{,}6 \pm 0{,}1)\mu_B$ et $(2{,}9 \pm 0{,}2)\mu_B$ pour le nickel et le fer respectivement. Une explication de ce genre a déjà été proposée par Goldman [24].

Nature de l'écran. — Le gaz de Fermi ne fournit dans un polyèdre et au-dessus de l'energie E_M qu'un écran $n'(k_M, R) = Z_i - Z_e$ (formule 15). Comme V_P et dV_P/dr s'annulent pour $r = R$ (cf. plus haut), la formule (14) montre que la densité de charge de cet écran a une valeur et une dérivée nulles à la limite du polyèdre :

$$\left(\frac{1}{4\pi r^2}\frac{dn'}{dr}\right)_{R,E_M} = \left[\frac{d}{dr}\left(\frac{1}{4\pi r^2}\frac{dn'}{dr}\right)\right]_{R,E_M} = 0.$$

L'écran $Z - Z_e$ est donc fortement *localisé* près de l'impureté. Le complément d'écran Z_e obtenu par déplacement du niveau de Fermi de E_M à E'_M a au contraire une densité *uniforme*. Il est représenté, fig. 6, par l'aire $\mathcal{B}$, tandis que l'aire $\mathcal{A}$ correspond à l'écran localisé $Z - Z_e$.

Aux très faibles concentrations ($c < 0{,}01$), Z_e et $E'_M - E_M$ sont négligeables (fig. 3, 4); les impuretés n'interagissent pratiquement pas. Le déplacement du niveau de Fermi intervient, nous le verrons, par sa dérivée par rapport à c dans l'énergie de dissolution (cf. **II**). Il donne donc un terme qui, nul aux dilutions infinies, peut être notable aux fortes concentrations.

Les figures 3, 4 montrent que Z_e et $E'_M - E_M$ restent *petits* même aux fortes concentrations. La petitesse du défaut d'écran Z_e semble en accord avec les observations expérimentales concernant l'énergie des transformations ordre-désordre et les constantes élastiques.

Un fort défaut d'écran Z_e donnerait naissance à une énergie coulombienne importante aux fortes concentrations dans l'état ordonné (énergie de Madelung), par suite du fort moment électrique multipolaire des polyèdres. Mais les énergies de transformation ordre-désordre sont faibles dans les alliages, ce qui semble indiquer un faible Z_e. Mott [56] a déduit de cette énergie pour le laiton β (CuZn) un déplacement de charge du zinc au cuivre d'environ 0,075, ce qui correspond assez bien à nos calculs. En effet dans les cas considérés $c = 0{,}5$ et l'on trouve $(qR)^{-3} = 0{,}016$. La figure 4 donne un défaut d'écran $Z_e = 0{,}23$ par atome de zinc à partager également entre les atomes de zinc et de cuivre, c'est-à-dire un déplacement de charge de 0,11.

D'après les calculs de Fuchs [22], l'interaction de Coulomb entre la charge électronique uniforme $-Z_e$ et la charge correspondante Z_e de l'impureté devrait, si Z_e était grand, augmenter fortement les constances élastiques de cisaillement d'un alliage par rapport au métal pur. Or c'est toujours une forte diminution qu'on observe [8], [41], [84].

Calcul plus exact du potentiel V_P aux dilutions infinies.

Le calcul de la résistivité due aux impuretés montre la nécessité d'un calcul plus précis du potentiel V_P. L'accord avec l'expérience est bien meilleur si, rejetant l'approximation de Born, on utilise directement la relation (11). Nous développons ce calcul pour les dilutions infinies et en indiquons quelques conséquences.

Résistivité des alliages CuZn, Ga, Ge, etc. — L'approximation de Born utilisée jusqu'ici n'est acceptable, on le sait, que pour les

électrons rapides. Mott (1936, *a*) l'a effectivement utilisée pour montrer qu'aux faibles concentrations la résistivité $\Delta\rho$ due aux impuretés (Zn, Ga...) dans les métaux nobles (Cu...) est proportionnelle au carré de la charge introduite Z :

$$\Delta\rho = AZ^2c.$$

C'est la loi expérimentale de Norbury [64].

Le coefficient A calculé par Mott est malheureusement beaucoup trop fort pour Z positif, comme l'indique la figure 8 où les points expérimentaux sont dus à Linde [46]. On peut se demander si ce désaccord ne provient pas de l'approximation de Born, qui est employée dans le calcul du potentiel V_P et dans celui de $\Delta\rho$ à partir de V_P.

Rejetant donc l'approximation de Born, nous avons calculé directement un potentiel V_p plus précis à l'aide de la formule du § 2.2 ; puis nous avons utilisé les déphasages exacts η_e correspondants pour calculer la résistivité par la formule également exacte [32] :

$$\Delta\rho = c\,\frac{4\pi}{k_M^2}\sum_l[(2l+1)\sin^2\eta_l - 2l\sin\eta_l\sin\eta_{l-1}\cos(\eta_{l-1}-\eta_l)].$$

La façon dont V_p a été calculé sera expliquée au paragraphe suivant. On obtient ainsi des résistivités beaucoup plus faibles, représentées

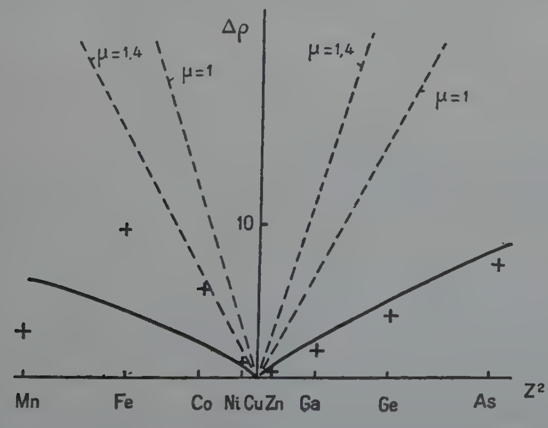


Fig. 8. — Résistivité $\Delta\rho$ en $\mu\Omega$ cm. pour 1 at. o/o d'impureté dans le cuivre. Trait pointillé : Mott. Traits continus : calcul plus exact ($\mu = 1$). Croix : valeurs expérimentales, d'après Linde.

figure 8 par un trait continu dont la courbure est probablement due à l'imprécision des calculs. L'accord avec les mesures de Linde est nettement meilleur pour $Z > 0$, quoique les valeurs trouvées soient

encore un peu trop fortes. Les valeurs calculées pour le nickel et surtout le cobalt et le fer sont nettement trop faibles. Ces solubilités se comportent aussi de façon anormale en ce qui concerne le pouvoir thermoélectrique [20].

Calcul de V_P. — Le potentiel $V_P = -(Z/r)\exp(-qr)$ obtenu par Mott déplace dans le gaz de Fermi une charge d'écran qui n'est égale à Z que dans l'approximation de Born.

Attaquant le problème en sens inverse, nous allons maintenant partir *a priori* d'un potentiel de ce type, qui a une forme raisonnable, et fixerons la valeur du paramètre q de façon que la charge d'écran soit exactement égale à Z ($n = Z$ dans (11)).

Les *déphasages* dus à des potentiels de ce type ont été calculés par Morse [51] pour $Z > 0$. Nous avons repris ces calculs, peu précis pour $l \neq 0$, et les avons étendus au cas $Z < 0$ par l'approximation W. K. B., acceptable dans ce cas. On voit facilement que η_l ne dépend que des variables $K = k/q$ et $\zeta = \mu Z/q$. Les charges $n(K)$ sont données figures 9 et 10, et les courbes $\frac{nK}{\zeta}(K^2)$ figure 11. Elles sont asymptotes, pour les grands K, aux droites $n = \frac{4}{\pi}K\zeta$ $\left(\text{ou } \frac{nK}{\zeta} = \frac{4}{\pi}K^2\right)$ de l'approximation de Born (15). Les droites sont marquées en pointillé. Les courbes calculées s'en écartent nettement aux faibles K, en particulier pour $Z > 0$ quand il y a des états liés.

S'il y a n_l états liés, on sait que $\eta_l(0) = n_l\pi$. Donc :

$$n(0) = 2\sum_l (2l+1)n_l,$$

c'est-à-dire soit 0 (pas d'état lié) ; soit $2 \times 1 = 2$ ($1s$ lié) ; soit $2\times(1+1+3) = 10$ ($1s$, $2s$, $2p$ liés) ; soit $2\times(1+1+3+1+3+5) = 28$ ($1s2s3s3p3d$ liés), etc... La figure 10 montre que les courbes $n(K)$ qui convergent en ces diverses valeurs sont réparties en zones a, b, c, etc., séparées par les courbes limites $\zeta = 0{,}7$; 3, 4, etc., qui aboutissent aux points $n(0) = 1$; 9, etc. L'allure des courbes est plus simple dans le cas $Z < 0$, où il n'y a pas possibilité d'états liés (fig. 9).

Le paramètre d'écran q se calcule alors de la façon suivante. Au sommet d'une distribution de Fermi, la valeur de $\frac{Kn}{\zeta} = \frac{k_M}{\mu}$ est connue pour un métal donné. La figure 11 donne les valeurs pour le cuivre et l'aluminium (pour $\mu = 1$). L'intersection avec les courbes $n = Z$ donne les valeurs de K^2, donc de $q = k_M/K$ correspondantes. Par suite des déviations par rapport à l'approximation de Born, on a évidemment :

$$q > q_0 \text{ pour } Z > 0 \qquad \text{et} \qquad q < q_1 \text{ pour } Z < 0,$$

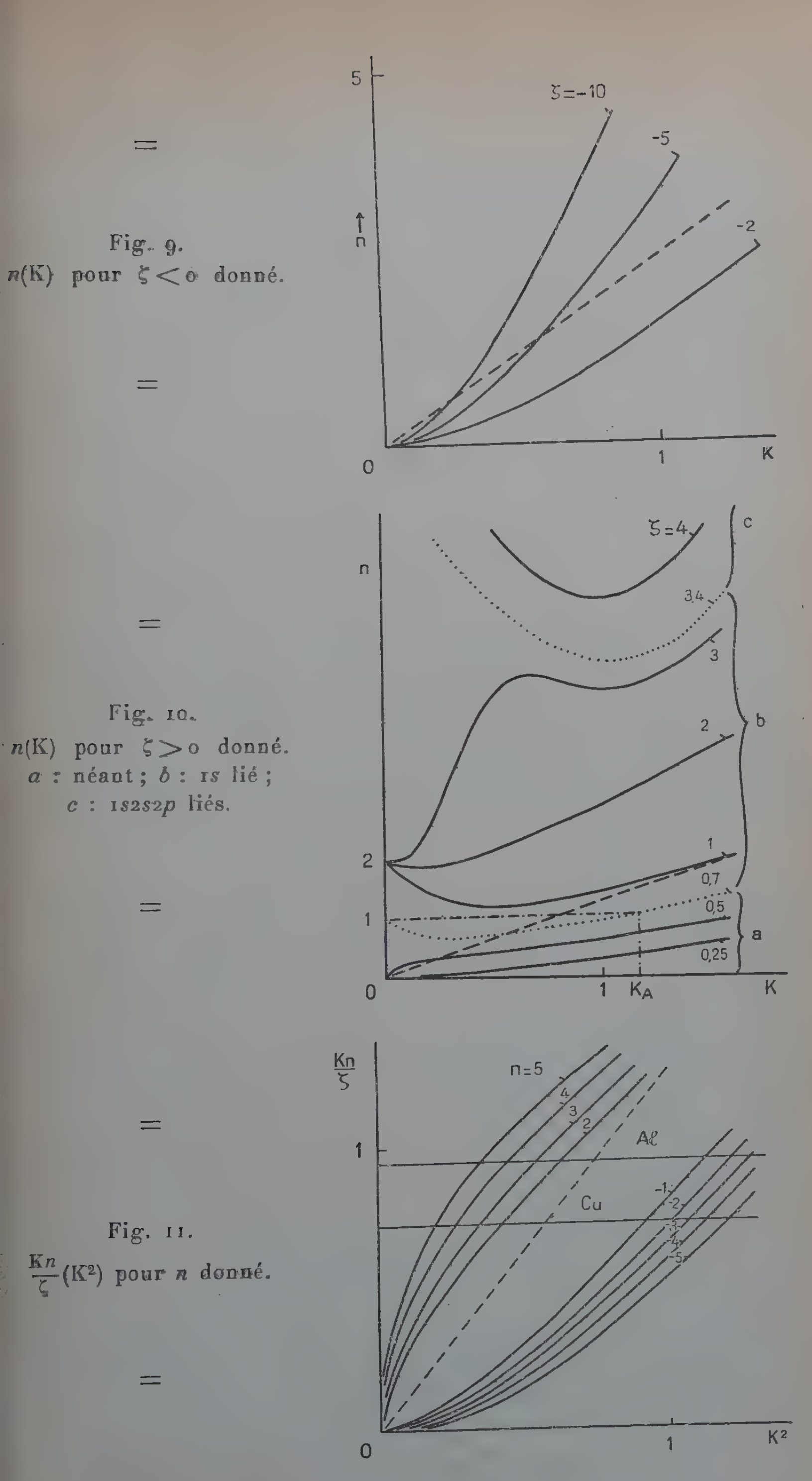


Fig. 9.
$n(\mathrm{K})$ pour $\zeta < 0$ donné.

Fig. 10.
$n(\mathrm{K})$ pour $\zeta > 0$ donné.
a : néant ; *b* : 1*s* lié ;
c : 1*s*2*s*2*p* liés.

Fig. 11.
$\frac{\mathrm{K}n}{\zeta}(\mathrm{K}^2)$ pour *n* donné.

où q_0 est la valeur (11) de Mott, correspondant à la droite pointillée de la figure 10. La différence $| q - q_0 |$ croît avec Z.

Le tableau I donne le rapport $q(Z)/q_0$ pour le cuivre et l'aluminium. On voit que les différences sont notables. La raison en est qu'autour d'un Z positif croissant on peut introduire un nombre croissant d'électrons liés de plus en plus concentrés autour de Z. Un Z négatif au contraire ne peut que repousser la charge électrique présente dans le métal, et ne peut donc avoir qu'un écran plus diffus.

TABLEAU I

Valeurs de $q/q_0 = K_0/K$ *déduites de la figure 11 (pour* $\mu = 1$*).*

Z	Cu	Al	Z	Cu	Al
1	(1,22)	(1,14)	— 1	0,79	0,81
2	1,17	1,10	— 2	0,745	0,775
3	1,26	1,16	— 3	0,72	0,75
4	1,43	1,30	— 4	0,70	0,73
5	1,70	1,48	— 5	0,68	0,71

En conclusion, un gaz d'électrons fournit un écran plus concentré autour d'une charge positive que d'une charge négative ; le résultat est inversé pour un gaz de trous positif. L'approximation de Born

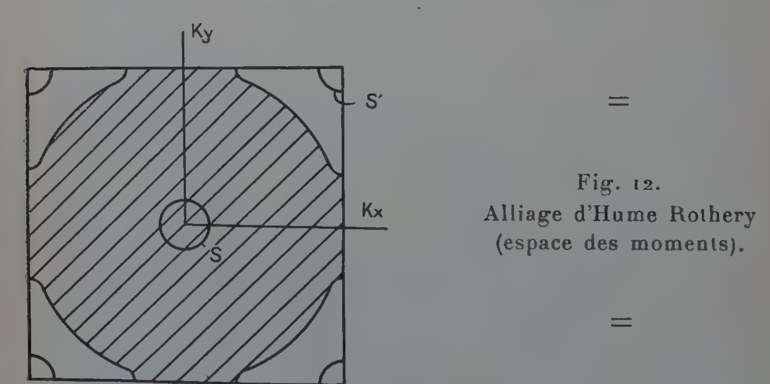


Fig. 12.
Alliage d'Hume Rothery
(espace des moments).

donne cependant une bonne valeur moyenne. Elle doit donc s'appliquer aux alliages de Hume Rothery, où la surface de Fermi touche, on le sait, les limites d'une zone de Brillouin et a une forme intermédiaire entre les sphères s des électrons et celles s' des trous positifs (fig. 12). Le modèle des bandes rigides est donc approprié à l'étude de ces alliages (cf. [37], [38]).

Enfin si deux bandes se chevauchent, l'une presque vide, l'autre presque pleine (fig. 7), la proportion *ns/nd* d'écran fourni par les électrons et les trous positifs autour d'une charge positive sera plus forte que la valeur (16) de l'approximation de Born, comme on s'en convainc en coupant la figure 11 par une droite $K = k_M/q =$ const. Ainsi, quand on introduit des charges Z positives, la bande *s* de la figure 7 se déplace plus vite que la bande *d* vers les énergies négatives, et *vice versa* pour $Z < 0$; *il est plus facile de remplir une bande que de la vider*. On explique peut-être ainsi que, dans l'aluminium, le pouvoir thermoélectrique, donc le nombre de trous positifs, varie plus vite quand on ajoute du magnésium ($Z = -1$) que des concentrations égales de silicium ($Z = 1$) [20].

Critique de l'approximation du potentiel perturbateur.

Nous avons traité les électrons de conduction non dans leur champ de potentiel réel V mais dans le champ du « potentiel perturbateur » V_P obtenu en y retranchant le potentiel périodique de la matrice. Cette méthode classique (cf. [57], [81], etc.) suppose évidemment les électrons peu perturbés ; c'est-à-dire *un potentiel perturbateur variant lentement par rapport à la longueur d'onde des électrons*. Dans ces conditions, l'interaction des électrons avec le potentiel périodique de la matrice est peu modifiée par la perturbation ; la seule variation est due à l'interaction avec V_P.

Dans les métaux, V_P varie rapidement avec la distance, et le théorème ne peut s'appliquer qu'aux électrons rapides voisins du niveau de Fermi. Pour les électrons lents, il faut introduire un fort terme correctif, et les conclusions que l'on peut tirer de l'étude précédente sont sans grande valeur.

Pour étudier les électrons lents — et les états liés s'ils existent — il faut donc utiliser non pas V_P mais le potentiel *total* V. On remplace en général ce potentiel, à grande distance de l'impureté, par une moyenne constante [32], [54], [70]. Un tel modèle se heurte encore à des difficultés de corrélation quand il y a de forts déplacements de charge dans la bande (cf. Introduction). Nous passons maintenant aux orbitales de valence, plus appropriées pour étudier les électrons lents et l'énergie.

II. — ORBITALES DE VALENCE

Nous traitons ici l'écran en équilibre dans le champ de l'impureté seule, puis considérons l'interaction de la matrice avec l'impureté et son écran. Les atomes interstitiels sont donc introduits à l'état neutre

(H dans le cuivre); un ion est substitué à un ion de même charge (Al^+ à Cu^+ dans le cuivre). L'impureté introduit une perturbation dans le métal, que nous traitons par une méthode approchée. Nous considérons successivement l'hydrogène interstitiel et les impuretés de substitution, dont les transitions X fournissent un exemple simple. Enfin nous abordons le cas des concentrations finies.

Hydrogène interstitiel.

Pour dissoudre de l'hydrogène dans un métal, il faut diviser une molécule H_2 en deux atomes, puis dépenser une certaine énergie pour introduire un atome d'hydrogène dans le métal. Ce dernier terme constitue l'*énergie de dissolution* E_S que nous voulons calculer.

Dans l'approximation développée ici, E_S est due à l'interaction du potentiel faiblement attractif V_P d'un atome d'hydrogène avec les électrons de conduction et les ions du métal de base. Un calcul exact de E_S est compliqué (cf. [17] pour CuH). Nous ferons ici une évaluation assez grossière en nous limitant aux termes coulombiens, en remplaçant les ions voisins par des charges ponctuelles, et en supposant que les électrons de conduction conservent une densité uniforme.

Le potentiel d'un atome d'hydrogène est [61] :

$$V_P = -\left(\frac{1}{r} + 1\right)\exp(-2r).$$

Son interaction avec les p électrons de conduction par atome du métal est :

$$E_1 = (3p/r_s^3)\int_0^\infty V_P r^2 dr = -3p/r_s^3, \tag{17}$$

où rs est le rayon de la sphère atomique. L'interaction avec les ions de charge p à distance r_i est $E_2 = -\sum_i p V_P(r_i)$, et finalement :

$$E_S = E_1 + E_2. \tag{18}$$

Si le proton n'est pas au voisinage immédiat d'un ion, on a $|E_2| \ll |E_1|$. *L'énergie de dissolution* E_S *est donc*, dans cette approximation, *due à l'attraction des électrons de conduction par le potentiel faible de l'impureté.*

Le tableau II montre que les valeurs ainsi obtenues sont au moins du bon ordre de grandeur. Les valeurs expérimentales sont prises chez Smithells [86]. Pour calculer E_2, on a supposé le proton au centre d'un cube dans le système cubique à faces centrées. En fait E_2 est petit et ne dépend que peu de la position exacte du proton. Pour

les métaux polyvalents ou de transition, la densité des électrons de conduction ne peut être considérée comme uniforme, et ce calcul simple n'est pas valable.

TABLEAU II

Energie de dissolution de l'hydrogène dans les métaux (en eV).

	Cu	Ag
r_s (U. A.)	2,66	3,00
	1	1
Calc.	— 1,95	— 2,9
Obs.	— 1,65	— 2,0

Il est intéressant de noter que l'*écran obtenu ici est très voisin de la solution par les orbitales moléculaires du* § 2. 1, *quand la masse effective des électrons de conduction est voisine de 1*. On a alors $q \simeq 1$ (équation 5) et le potentiel d'écran :

$$V = V_P + 1/r = (1/r)[1 - \exp(-qr)]$$

est très voisin du potentiel obtenu ici :

$$V' = (1/r)[1 - (1 + r)\exp(-2r)].$$

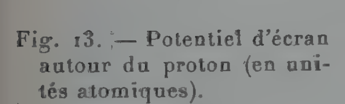
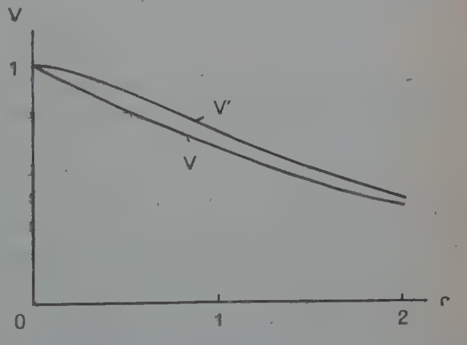


Fig. 13. — Potentiel d'écran autour du proton (en unités atomiques).
V : solution o. v. ;
V' : solution o. m.



La figure 13 compare ces deux potentiels pour $q = 1$. Si, pour calculer E_1, on utilise le potentiel V_P obtenu par les orbitales moléculaires, on a :

$$E_1 = -\frac{3p}{r_s^3}\int_0^\infty \frac{\exp(-qr)}{r} r^2 dr = -\frac{3p}{q^2 r_s^3}$$

qui est identique à (17) *pour* $q = 1$.

Transitions X.

Nous montrons comment les phénomènes de rayons X entrent dans le cadre de cette étude. Puis nous évaluons l'énergie des transitions dans l'approximation des orbitales de valence.

L'atome considéré comme une impureté. Principe de Frank et Condon. — A la fin d'une absorption K, un électron interne a été éjecté d'un atome du métal, laissant un trou positif dans la bande K. Ce trou est mobile ; il peut sauter d'atome en atome. Mais sa vitesse est très faible, car la bande K est étroite ; il a une « masse effective » beaucoup plus grande que les électrons de conduction. Par application du principe de Frank et Condon [11], [16], les électrons de conduction doivent donc, à la fin de l'absorption, être en équilibre dans le champ du trou positif. Ils doivent en particulier fournir un écran à la charge du trou positif (cf. [17]).

Un écran de ce type doit exister dans tous les cas où le trou créé a une masse effective beaucoup plus grande que celle des électrons de conduction, c'est-à-dire pour toutes les transitions X, et aussi les absorptions optiques par « effet photo-électrique interne » des métaux nobles, où le trou est créé dans la bande *d*.

Si le trou positif créé est *immobile*, l'atome auquel il appartient peut être traité comme une impureté habituelle ; dans le cas du lithium traité ci-dessous, l'ion excité Li $1s^{++}$ se comportera de façon analogue à un ion Be $1s^{2++}$. Dans l'état ainsi décrit, le trou est *au sommet* de la bande interne. Ce point est important quand cette bande a une largeur appréciable, 3*d* dans l'absorption optique du cuivre par exemple. Bohr et Skinner [76], [77] ont les premiers considéré un atome excité par une absorption X comme une impureté dont la charge doit recevoir un écran. Le traitement de Skinner sera utilisé dans l'approximation des configurations ioniques (cf. III).

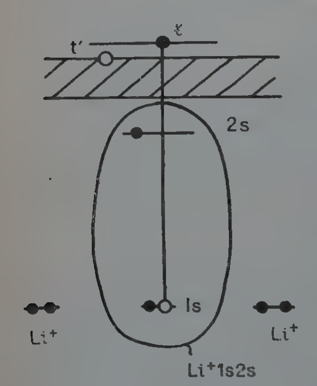


Fig. 14. — Absorption K du lithium.

Limite d'absorption. — Nous considérons par exemple l'absorption K du lithium (fig. 14). Dans l'approximation des orbitales de valence, l'écran est obtenu par un électron 2*s* formant avec l'ion Li^{++} un ion $Li^{+}1s2s$. L'électron 2*s* est soustrait à la bande de conduction ; une étude des probabilités de transition montre que le trou *t′* correspondant doit se trouver au sommet de la bande [18].

La fréquence limite d'absorption s'obtient quand l'électron est éjecté juste au sommet de la bande de conduction. L'énergie dépensée sert à exciter l'ion Li^+ de l'état $1s^2$ à l'état $1s2s$. Si l'ion était dans un gaz, cette énergie serait $E_{ion} = 58{,}7$ eV [1]. La limite d'absorption X mesurée correspond à $E_{exp} = 54{,}7$ eV [79]. On a donc un bon ordre de grandeur, mais une différence appréciable.

On obtient des différences $\Delta = E_{exp} - E_{ion}$ du même ordre dans tous les cas similaires où E_{ion} est connue (tableau III). E_{ion} est ici l'énergie d'excitation des ions dépouillés de leurs électrons de valence (Li^+, Be^{++}), déduite des spectres optiques [1], [3]. Les limites d'absorption (ou d'émission) X, E_{exp}, ont été mesurées par Skinner [78], Johnston [36] et Kingston [40]. Nous y avons joint les limites d'absorption optique des métaux nobles, interprétés comme des transitions $d - s$ [7], [19]. Nous interprétons Δ par une correction de Coulomb. Le terme d'échange correspondant est petit (cf. appendice).

Correction de Coulomb. — Les électrons de l'ion excité fournissent un écran moins efficace à la charge du noyau que ceux de l'ion stable. L'excitation X introduit donc un potentiel perturbateur V_P qui attire les électrons de conduction et *diminue* l'énergie nécessaire à l'excitation.

Tableau III

Limite d'absorption (ou d'émission) X (en eV).

		E_{exp}	E_{ion}	Δ	Δ_c		
					o. m.	o. v.	
Li	K	54,7	58,7	4,2	2,4	2,7	
Be	*id.*	111,9	118,0	6,1	7,3	4,3	
Na	LII, III	30,5	32,75	2,25	1,7	1,6	1,1
Mg	*id.*	49,4	52,5	3,1	4,0		2,25
Al	*id.*	72,5	76,4	3,9	6,5		3,2
K	MII, III	18,5	20,0	1,5	1,2		0,5
Ca	*id.*	24,8	25,1	0,3	2,3		1,25
Cu	MIV, V	2,15	2,7	0,55	3,4		1,7
Ag	NIV, V	4	4,85	0,85	2,8		0,95
Au	OIV, V	2,5	1,85	— 0,65	2,8		0,85

Le terme de Coulomb Δ_c considéré ici est l'analogue de l'énergie de dissolution calculée plus haut pour l'hydrogène ; il se déduit du potentiel V_P par les mêmes formules (17), (18).

Comme, dans l'approximation des orbitales moléculaires, l'excitation X revient à peu près à introduire une charge positive dans le métal, on a, en utilisant la remarque faite au § 3.1 :

$$V_P \simeq -(1/r)\exp(-qr).$$

La sixième colonne du tableau III donne les valeurs correspondantes du terme Δ_c (pour $\mu = 1$). On a : $q \simeq 1$, et $\Delta_c \simeq -3p/r_s^3$ (formule 17).

Il serait plus satisfaisant de calculer V_P dans l'approximation des orbitales de valence. V_P est alors la différence des potentiels des ions excité et stable ; $Li^+ 1s2s$ et $1s^2$ par exemple. Il est assez sensible à la forme des fonctions d'onde des électrons. Seuls les métaux simples (Li, Be, Na) ont donc été traités assez exactement. Pour les autres, une valeur approchée est donnée (tableau III, 7e et 8e colonnes). Ces résultats confirment l'évaluation précédente.

Nous donnons pour finir quelques détails sur les calculs. Pour le lithium et le béryllium, les fonctions d'onde calculées par Morse, Young et Haurwitz [52] donnent facilement pour l'interaction de V_P avec les électrons de conduction du métal :

$$\Delta_e = \frac{3p}{r_s^3}\left[\frac{1}{\mu^2} - \frac{1}{2Z^2} - \frac{4}{3N\nu^2}\left(\frac{120}{2^7} - \frac{120A}{(1+b)^6} + \frac{36A^2}{(2b)^5}\right)\right],$$

où Z est le nombre atomique, $A = (a+b)^3/(1+a)^4$ et les constantes a, b, μ, ν sont données par le tableau IV. L'interaction de V_P avec les ions positifs voisins est négligeable, si ceux-ci sont assimilés à des charges ponctuelles.

TABLEAU IV

Constantes des fonctions de Morse et al.

	a	b	μ	ν
Li	2,75	1,98	2,69	1,095
Be	2,50	1,74	3,69	1,585

Pour le sodium, où des fonctions du type (17) n'ont pas été calculées, nous avons pris des potentiels de Thomas Fermi pour $Na^+ 2p^6$ et $Na^{++} 2p^5$ (cf. [25]), et calculé directement la fonction d'onde de l'électron $3s$ dans le champ de l'ion Na^{++} (7e colonne).

Pour éviter ces calculs laborieux, on peut aussi (8e colonne) remplacer le potentiel d'un ion excité tel que $Na^+ 2p^5 3s$ par celui de l'ion stable voisin $Mg^+ 2p^6 3s$. Si V est le potentiel d'un ion de nombre

atomique Z et avec N électrons, on a dans l'approximation de Thomas Fermi (cf. [25]) :

$$V_P = \frac{\partial V}{\partial Z} = \begin{vmatrix} \frac{V_0}{Z}\left[\frac{1}{3} - \frac{\varepsilon_0 + 1}{\lambda_2(\lambda_1\varepsilon_0/2 - 1)}\right] - \frac{4}{3}\frac{\varphi}{r} + \frac{5}{3}\frac{k\eta}{r} \text{ pour } r < r_0 \\ 0 \text{ pour } r > r_0 \end{vmatrix}$$

avec :

$$k \simeq -0{,}083(1 - N/Z)^3 ; \qquad r_0 \simeq 4{,}65\varepsilon_0^{1/\lambda_2} Z^{-1/3} ; \qquad V_0 = (N - Z)/r_0$$

$$\lambda_1\varepsilon_0[(1 + \varepsilon_0)^{\lambda_1/2} + 1]^{-1} = 1 - N/Z ; \qquad \lambda_1 = 7{,}772 \quad \text{et} \quad \lambda_2 = 0{,}772.$$

Enfin φ et η sont deux fonctions universelles de $x = 1{,}13 r Z^{1/3}$. Comme Δ_c dépend surtout de l'électron extérieur ($3s$ pour Na), et que cette approximation donne à l'électron une orbite un peu trop petite, on a ainsi une limite inférieure de Δ_c. La valeur obtenue pour le sodium est effectivement plus petite que celle obtenue plus haut.

Comparaison avec l'expérience et corrélation de Coulomb entre les ions. — Le tableau III montre que le terme de Coulomb Δ_c est du même ordre de grandeur que la différence Δ à expliquer, et rend compte en particulier de sa variation avec le nombre atomique pour les éléments légers : Δ croît de gauche à droite dans une ligne et décroît de haut en bas dans une colonne du tableau périodique. Les deux approximations des orbitales moléculaires et de valence donnent des résultats du même ordre de grandeur pour Δ_c. La seconde est plus satisfaisante, puisque le terme principal E_{ion} est calculé dans cette approximation.

Pour les métaux lourds, l'accord est moins bon, les valeurs de la 8e colonne étant des limites inférieures. Nous pensons que la différence est due en grande partie à l'*interaction de corrélations type Van der Waals* [1] *des ions monovalents.* Cette interaction doit en effet être assez forte pour les gros ions $(nd)^{10}$ du cuivre, de l'argent et de l'or. L'ion $(nd)^9(n+1)s$ créé par absorption optique a par contre une interaction faible avec les ions $(nd)^{10}$ voisins. L'interaction de l'électron $(n+1)s$ avec les ions voisins ne sera que le dixième environ de celle d'un ion $(nd)^{10}$, car le terme de Van der Waals est proportionnel au nombre d'électrons dans l'orbite considérée (cf. ci-dessous).

L'absorption optique détruit donc 12 liaisons de Van der Waals entre ions $(nd)^{10}$, soit une énergie $2w$, si w est la part de l'énergie de cohésion du métal pur due aux interactions de Van der Waals. Les

[1] Comme les orbites des ions voisins se recouvrent, le développement de la corrélation en termes de Van der Waals en R^{-6}, R^{-8}... est divergent [9]. Nous conservons cependant la dénomination et admettons que le terme en R^{-6} est encore prépondérant.

résultats du tableau III semblent indiquer que *w est de l'ordre de — 1 à — 1,5 eV pour le cuivre et l'or, et — 0,5 à — 1 eV pour l'argent.*

La valeur plus faible pour l'argent serait due à ce que l'ion Ag est le moins facilement excitable. Des *w* de cet ordre expliqueraient la différence entre l'énergie de cohésion mesurée pour le cuivre et les calculs de Fuchs [21] et Hsu [31]. Nous retrouverons un résultat analogue dans les alliages.

Impuretés en substitution. — Après une définition précise de l'énergie de dissolution, nous étudions deux petits termes qui jouent quand soluté et solvant ont même valence : différences de nombre atomique et de « taille ». Dans les autres cas (CuZn ; CuAl ; quelques autres cas connus), nous tenons compte d'un terme de valence et d'une possible interaction de Van der Waals entre les ions des métaux nobles.

Energie de dissolution. — C'est l'énergie dépensée pour prendre un atome dans le soluté pur à l'état solide et l'introduire en substitution dans le solvant.

Plus exactement, pour un alliage de composition A_cB_{1-c}, nous définissons l'énergie de dissolution E_A *par atome* A *dissous* par l'équation :

$$A_{cN-1}B_{(1-c)N} + A_{\text{mét}} = A_{cN}B_{(1-c)N-1} + B_{\text{mét}} + E_A, \qquad (19)$$

où N est un grand nombre. Si E est l'énergie de formation par atome d'alliage :

$$cA_{\text{mét}} + (1-c)B_{\text{mét}} = A_cB_{1-c} + E, \qquad (20)$$

on a évidemment :

$$E_A = \partial E/\partial c. \qquad (21)$$

Les mesures expérimentales donnent plutôt l'énergie E'_A définie par :

$$A_{cN-1}B_{(1-c)N} + A_{\text{mét}} = A_{cN}B_{(1-c)N} + E'_A. \qquad (22)$$

On a évidemment :

$$E = cE_A + (1-c)E_B$$

et :

$$E_A = [E'_A/(1-c)] - \int_0^c E'_A d[c/(1-c)]. \qquad (23)$$

E'_A ne diffère donc de E_A qu'aux concentrations finies, cas que nous étudierons en fin de chapitre.

Éléments de même valence. Polarisation et taille. — Nous étudions ici deux effets petits et de signes opposés. Nous rappelons que pour

deux éléments de même valence et de même taille la faible énergie de dissolution négative est liée à la polarisation du gaz de Fermi. Une différence de taille introduit une petite énergie positive de distorsion qui peut s'évaluer par des méthodes d'élasticité classique. On rend compte en particulier de la différence limite de 15 o/o entre les rayons atomiques de deux constituants totalement miscibles.

La substitution dans un métal d'un soluté de même valence introduit des nœuds supplémentaires dans la fonction du bas de la bande de conduction (5 nœuds au lieu de 4 pour AgAu) et de faibles déplacements de charge dans la bande. Si nous négligeons ces déplacements, chaque polyèdre atomique peut être traité comme dans le métal pur correspondant, et les fonctions d'onde se raccordent aisément aux limites des polyèdres. L'énergie de dissolution est évidemment *nulle* dans cette approximation. En fait, les énergies du bas des bandes de conduction des deux éléments sont un peu différentes. Les puits de potentiel ainsi créés font diffuser les électrons [54] et polarisent légèrement le gaz de Fermi [32]; les électrons tendent à se concentrer dans les régions de potentiel plus négatif. La stabilisation due à ce réarrangement de la charge produit une énergie de dissolution faiblement négative (— 0,15 eV/at pour AgAu). *Nous négligerons ce terme* dans ce qui suit, comme tous les effets dus à une polarisation de la bande de conduction.

Nous étudions la distorsion due à ce que soluté et solvant ont des « tailles » différentes par les méthodes de l'élasticité classique (cf [13], [35], [69]). Un trou sphérique de rayon r_s (rayon de la sphère atomique) est découpé dans le métal de base, traité comme un continuum élastique et isotrope. Un atome de soluté, représenté par une sphère de rayon r'_s, y est introduit. Le contact entre soluté et matrice s'établit suivant une sphère de rayon intermédiaire a.

L'énergie de distorsion de la matrice est alors [87] (χ et ν compressibilité et coefficient de Poisson) :

$$\theta = \frac{12\pi(1-2\nu)}{1+\nu}\,\frac{r_s(a-r_s)^2}{\chi}.$$

On a de même pour l'atome dissous (Mott et Jones, 1936) :

$$\theta' = \frac{4\pi r_s'^3}{6\chi'}\left(\frac{a^3 - r_s'^3}{r_s'^3}\right)^2 - \frac{4\pi r_s'^3}{18}\left(2\gamma' + \frac{1}{3}\right)\left(\frac{a^3 - r_s'^3}{r_s'^3}\right)^3$$

$$\simeq \frac{6\pi r'_s(a - r'_s)^2}{\chi'}\left[1 - \left(2\gamma' - \frac{5}{3}\right)\frac{a - r'_s}{r'_s}\right].$$

Le terme en $\left(2\gamma' + \frac{1}{2}\right)$, lié à l'expansion thermique, est important si l'atome dissous est fortement déformé.

L'équilibre des pressions des milieux en contact, $d(\theta + \theta')/da = 0$, donne :

$$\alpha \simeq \alpha_0 \left[1 + \left(\frac{5}{2} - 3\gamma'\right)\Delta/r'_s(1 + \alpha_0)\right]$$

avec :

$$\alpha_0 = (1 + \nu)r'_s\chi/[2(1 - 2\nu)r_s\chi'], \quad \Delta = r'_s - r_s \quad \text{et} \quad \alpha = (a - r_s)/(r'_s - a).$$

On tire α, donc a, de cette équation ; l'énergie totale de distorsion est alors :

$$\varepsilon = \theta + \theta' = \frac{6\pi\Delta^2 r'_s}{(1 + \alpha_0)\chi'}[1 + b\Delta/r'_s], \tag{24}$$

avec :

$$b = [(5 - 6\gamma')\alpha_0 + 4\gamma' - 10/3]/(1 + \alpha_0)^2,$$

et :

$$\theta/\theta' = \alpha^2/\alpha_0 \simeq \alpha_0. \tag{25}$$

Nous prenons pour les constantes des deux milieux leurs valeurs dans le solvant et le soluté *purs*. Cette approximation n'est pas très satisfaisante pour l'atome dissous, qui est en général dans un état électronique assez différent. Mais l'énergie totale ε en dépend peu, car elle est contenue en majeure partie dans la matrice : pour $\chi' \simeq \chi$ et $\nu' \simeq \nu \simeq 0,33$, $\alpha_0 \simeq 2$ donc $\theta \gg \theta'$ (relation 25 ; cf. [13]).

Les valeurs de ε ainsi obtenues pour des couples de métaux divalents, où le terme de polarisation décrit plus haut est sans doute faible, sont en bon accord avec les faibles énergies de dissolution positives E_s déduites des limites de solubilité c (tableau V). γ et χ sont pris chez Mott et Jones [57], ν chez Köster [41] et Landolt et Bornstein [43]. Enfin [12] :

$$E_s \simeq \frac{kT}{1 - 2c} \operatorname{Log} \frac{1 - c}{c}. \tag{26}$$

Tableau V

Energie de dissolution des alliages de métaux divalents (en eV).

Alliages	Δ/r'_s	$\chi' \times 10^{12}$	γ'	ν	α	ε	E_s
CdZn	0,120	1,71	2,01	0,30	1,87	0,15	(0,15)
ZnCd	— 0,107	2,25	2,19	0,27	1,21	$0,12_5$	0,21
MgCa	— 0,185	5,7	(2)	0,28	0,98	0,28	0,26 à 0,32
MgZn	+ 0,150	1,72	2,01	0,28	2,19	$0,19_5$	0,20
ZnMg	— 0,130	3,0	1,51	0,27	0,93	$0,15_5$	0,31
HgZn	0,150	1,72	2,01	(0,3)	3,50	0,09	> 0,11
ZnHg	— 0,130	3,8	(2)	0,27	1,02	0,16	> 0,15

Cette formule repose sur des approximations que nous rappelons :

1. Il y a mélange parfait. L'entropie de l'alliage à concentration c peut alors s'écrire :

$$S = f(T) + k[c \operatorname{Log} c + (1-c) \operatorname{Log}(1-c)]. \qquad (27)$$

2. L'énergie de formation *par atome d'alliage* est une fonction parabolique de la concentration :

$$E(c) = c(1-c)E_S. \qquad (28)$$

3. La concentration limite c de la phase primaire correspond à un minimum de l'énergie libre de formation de l'alliage :

$$\partial\Delta F/\partial c = \partial(E - TS)/\partial c = 0. \qquad (29)$$

La formule cherchée (26) découle immédiatement des équations (21), (27), (28), (29).

Ces formules expliquent que deux constituants dont les tailles diffèrent de plus de 15 o/o ne sont pas totalement miscibles [33]. Il y a en effet miscibilité complète quand la température est assez élevée pour que l'énergie libre $\Delta F(c)$ de l'alliage n'ait qu'un minimum. La température critique est, d'après (24), (27), (28) et (29) :

$$T_0 \simeq E_S/4k \simeq 6\pi\Delta^2 r_S/\chi k.$$

Il n'y aura pas miscibilité complète si T_0 est supérieure à la température de fusion T_f de l'alliage. D'où la condition (cf. aussi [35]) :

$$\left|\frac{\Delta}{r_S}\right| < \left(\frac{kT_f\chi}{6\pi r_S^3}\right)^{1/2}.$$

Pour les métaux et alliages usuels $\chi T_f \simeq 10^{-9}$ C. G. S., et la limite ainsi trouvée est voisine de 15 o/o.

Facteur de valence. CuZn. — Dans le cas par exemple de l'alliage CuZn, l'équation (19) correspond au cycle suivant (fig. 15) :

1) évaporer et ioniser une fois un atome de zinc métal. L'énergie dépensée est la somme de l'énergie de cohésion H_S et du premier potentiel d'ionisation E_1 du zinc ;

2) substituer l'ion Zn^+ à un ion Cu^+ dans le cuivre métal. Soit ζ l'énergie dépensée ;

3) recombiner l'ion Cu^+ avec l'électron libre e pour former un atome qu'on replace dans le cuivre métal. L'énergie dépensée est $-(H_S + E_1)_{Cu}$.

L'énergie de dissolution est au total :

$$E_S = (H_S + E_1)_{Zn} - (H_S + E_1)_{Cu} + \zeta. \qquad (30)$$

Le terme ζ s'écrit :

$$\zeta \simeq \Delta_c - 2W_{CuCu} + 2W_{CuZn} + (\varepsilon)_{CuZn}. \qquad (31)$$

Δ_c est l'interaction coulombienne du réseau du cuivre avec la perturbation introduite par l'atome de zinc ; $2(-W_{CuCu} + W_{CuZn})$ est, avec des notations évidentes, le changement des douze interactions de Van der Waals des ions ; enfin $(\varepsilon)_{CuZn}$ est l'énergie de distorsion du zinc dans le cuivre. Les deux premiers termes sont analogues à ceux rencontrés dans l'étude des rayons X.

Δ_c a été calculé par la méthode de Thomas Fermi développée plus haut pour l'hydrogène. Cette méthode s'applique plus exactement au cas étudié ici. Nous avons tenu compte du déplacement des ions Cu^+ voisins du zinc, et admis qu'il n'y avait pas d'échange de charge entre les divers polyèdres atomiques.

Avec les valeurs de H_s données par Kubaschewski et Evans [42], E_1 donné par Bacher et Goudsmit [3] et ε calculé comme par la formule (24),

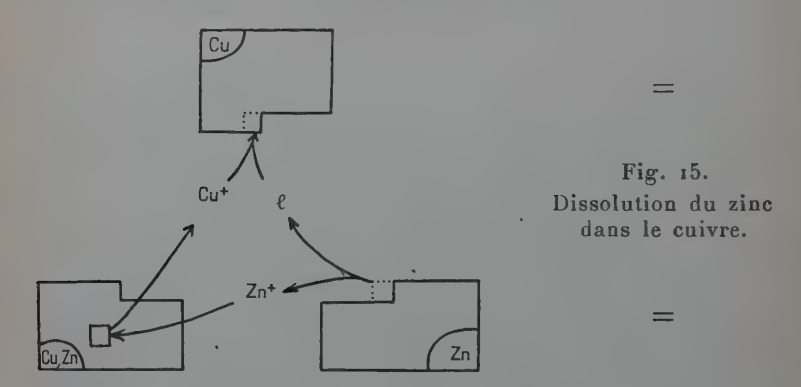


Fig. 15.
Dissolution du zinc dans le cuivre.

on trouve (tableau VI) $E_s \simeq -1{,}9$ eV $- 2W_{CuCu} + 2W_{CuZn}$. La valeur expérimentale est $E_s = -0{,}35$ eV (Kubaschewski et Evans, *loc. cit.*). La précision de la valeur calculée est d'environ $\pm 0{,}5$ eV, par suite surtout de l'imprécision des énergies de cohésion H_s. Le terme W_{CuZn} est certainement petit, comme l'était l'interaction des ions $3d^{10}$ et $3d^9 4s$ dans l'absorption optique du cuivre. La valeur de E_s obtenue semble donc indiquer que $W_{CuCu} \simeq -1$ eV, la valeur déjà obtenue précédemment.

En conclusion, l'énergie de dissolution du zinc dans le cuivre serait fortement négative, de l'ordre de -2 eV, si l'introduction du zinc ne détruisait pas des interactions de Van der Waals entre ions. Le terme négatif est essentiellement dû à l'attraction plus forte des électrons de conduction par le zinc que par le cuivre.

Cas général. CuAl. — Pour substituer un atome d'aluminium au cuivre, deux éléments situés dans des lignes différentes du tableau périodique, nous procédons suivant le cycle suivant :

1) introduire un atome de sodium métal en substitution dans le cuivre (fig. 16*a*). Si nous négligeons la polarisation étudiée plus haut, l'énergie dépensée est :

$$E_a = (\varepsilon)_{CuNa} - W_{CuCu}.$$

TABLEAU VI

Energie de dissolution de métaux de valences différentes (en eV).

	$\Delta(H_S+E_1)$	Δ_c	$\Delta(H_S+E_1)+\Delta_c$	ε	E_S calc.	E_S exp.
MgAl	3,89	— 3,62	0,27	0,23	0,5	(0,2)
CuAl	3,01	— 6,36	— 3,35	0,17	$-3,2-W_{Cu}$	— 0,8
Zn	— 0,48	— 1,50	— 1,98	0,09	$-1,9-2W_{Cu}$	— 0,35
As	0,08	— 4,58	— 4,50	0,53	$-3,95-2W_{Cu}$	— 2,7
Sn	0,21	— 4,07	— 3,86	0,86	$-3,0-W_{Cu}-W_{Ag}$	— (0,5)
Pt	0,46	0,95	1,41	0,25	$1,65-W_{Cu}-W_{Au}$	— 0,25
AgZn	— 0,48	— 1,98	— 2,46	0,07	$-2,4-W_{Cu}-W_{Ag}$	— 0,2
Cd	— 0,42	— 0,92	— 1,34	0,13	$-1,2-2W_{Ag}$	— 0,2
AuNi	— (0,74)	1,30	0,56	0,50	$1,05-W_{Cu}-W_{Au}$	0,15
Cd	— 0,42	— 0,97	— 1,39	0,15	$-1,25-W_{Ag}-W_{Au}$	— 0,4
Hg	— 1,98	— 0,66	— 2,64	0,40	$-2,25-2W_{Au}$	0,1

Le terme de Van der Waals W_{CuCu} vient de ce que l'atome de cuivre déplacé perd six voisins. Les interactions de Van der Waals entre ions Na^+ et Cu^+ sont évidemment négligeables ;

2) évaporer et ioniser une fois un atome d'aluminium. L'énergie dépensée est $(H_S + E_1)_{Al}$, avec les notations précédentes ;

3) substituer l'ion Al^+ à l'ion Na^+ dans le cuivre. L'énergie dépensée sera la somme d'une énergie de distorsion $(\varepsilon)_{CuAl} - (\varepsilon)_{CuNa}$ et d'un autre terme ζ ;

4) recombiner l'ion Na avec l'électron libre *e* et replacer l'atome formé dans le sodium métal (fig. 16*b*). L'énergie dépensée est $-(H_S + E_1)_{Na}$.

D'où pour l'énergie de dissolution cherchée :

$$E_S = (H_S + E_1)_{Al} - (H_S + E_1)_{Na} + (\varepsilon)_{CuAl} - W_{CuCu} + \zeta.$$

Le terme ζ est la somme de deux termes : une interaction de Coulomb entre le cuivre et la perturbation *due à la substitution de l'ion* Al^+ *à l'ion* Na^+ ; et l'interaction de Van der Waals $2W_{CuAl}$ entre ions Cu^+ et Al^+ :

$$\zeta = \Delta_c + 2W_{CuAl}.$$

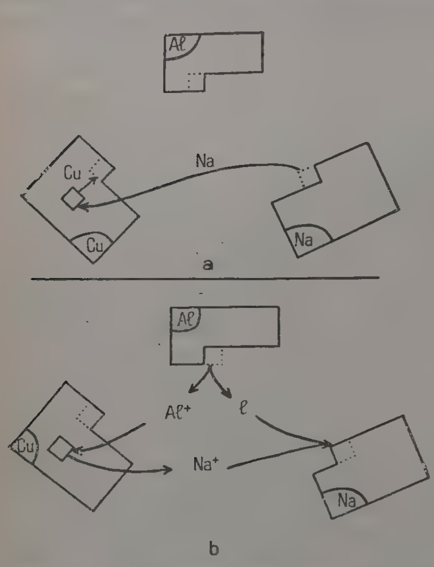


Fig. 16. — Energie de dissolution de l'aluminium dans le cuivre.

Les divers termes sont calculés comme pour **CuZn**. W_{CuAl} est petit pour les mêmes raisons que W_{CuZn}. Nous le négligerons.

Le tableau VI montre que l'accord ainsi obtenu avec l'expérience [65] n'est qu'approximatif si l'on prend comme précédemment $W_{CuCu} \simeq 1$ eV. Mais le large terme Δ_c n'a pas été calculé avec une grande précision.

L'énergie de dissolution a été calculée de la même façon pour les quelques alliages où des mesures assez précises ont été faites (tableau VI) par mesure de force électromotrice ou de pression de vapeur (**CuPt**, **AuNi**, **AuCd**, **AuHg** [42] ; **AgZn** et **AgCd** [6]) ; par la limite de la phase primaire (**MgAl**) ; par extrapolation des mesures calorimétriques aux fortes concentrations (**CuAs**, **CuSn**).

Conclusion. Terme de Van der Waals. — Les énergies E_s calculées sont portées à l'avant-dernière colonne du tableau VI. Comme les énergies de cohésion H_s ne sont en général connues qu'à $\pm$ 0,25 eV, leur précision est au mieux de $\pm$ 0,5 eV, donc de l'ordre de grandeur des énergies mesurées. Aussi une analyse précise des résultats n'est-elle pas possible. On voit cependant que, sauf pour **CuPt** et **AuNi**, on obtient un accord satisfaisant *en prenant pour les termes de Van der Waals entre ions les valeurs déduites de l'étude des rayons X*, soit — 1 à — 1,5 eV pour W_{Cu} et W_{Au} et 0,5 à 1 eV pour W_{Ag}. **CuPt**, **AuNi** seront étudiés plus loin par les configurations ioniques (cf. III).

En résumé, nous avons analysé l'énergie de dissolution d'une impureté de substitution en plusieurs termes : valence, taille, inter-

actions de Van der Waals entre ions, et enfin polarisation, que nous avons négligée.

Le *facteur de valence* (tableau VI, 4e colonne) prime en général les autres termes et explique des énergies de dissolution parfois assez fortement négatives (CuAs). Son importance augmente avec Δ_c, c'est-à-dire avec la différence des valences.

Dans tous les alliages étudiés, sauf CuSn, la différence des rayons atomiques est inférieure à 15 o/o, et le *facteur de taille* ε est petit (5e colonne).

Nous pensons que les interactions de *Van der Waals* entre ions réduisent fortement les énergies négatives de dissolution quand le métal de base est noble (Cu, Ag, Au) ou de transition, ce qui rend *moins stables les composés à forte teneur* d'impureté et permet donc une *phase primaire* étendue. Ainsi, par exemple, le silicium dissout moins de cuivre que le cuivre de silicium. C'est l'effet de « valence relative » de Hume Rothery ([33]; cf. [4]) (1).

Enfin la différence d'électronégativité entre l'impureté et le métal de base *polarise* la bande de conduction, mais ne contribue sans doute ici qu'un terme petit à l'énergie de dissolution (sauf pour CuPt, AuNi).

Energies de dissolution aux concentrations finies.

Les énergies de dissolution aux dilutions infinies étudiées jusqu'ici donnent la dérivée à l'origine de l'énergie $E(c)$ de formation de l'alliage. La *courbure* de $E(c)$ est liée à l'interaction des impuretés entre elles. L'étude de CuZn montre que divers termes interviennent; celui de valence semble en général prédominer. Nous soulignons le rapport qu'il y a avec le déplacement des limites d'absorption X dans les alliages.

CuZn. — Les formules (30), (31) montrent que l'énergie E_s varie avec la concentration comme $\zeta = \Delta_c - 2w + \varepsilon$.

La variation de Δ_c est due à celle du potentiel perturbateur V_P. Dans l'approximation des orbitales moléculaires, elle déplace l'ensemble de la bande de conduction d'une énergie $\delta E = \delta E_M$ par atome de zinc introduit. D'après (7), Δ_c change par suite de :

$$\delta\Delta_c = p\delta E_M/\delta c = pZq/[3c \text{ sh } qR(\coth qR - 1/qR)^2]. \qquad (32)$$

(1) Le rôle possible de la polarisation des ions, et en particulier des forces de Van der Waals, a été souligné en premier par Hume Rothery et Raynor [34].

L'équation (7) avait été obtenue en négligeant les termes de corrélation, importants dans un calcul d'énergie (cf. I). Si nous introduisons une correction moyenne d'*échange* V_e suivant la méthode de Slater [82], l'équation (7) est encore valable, mais avec un paramètre q donnant un écran plus concentré, et une charge effective Z plus forte :

$$\left.\begin{aligned} q^2 &= q_0^2/(1 - 3\mu/2\pi k_M) \\ Z &= Z_0 q^2/q_0^2 \end{aligned}\right\} \qquad (32\ bis)$$

et :

où q_0 est la valeur (11) de Mott et Z_0 la charge réelle de l'impureté. La formule de Slater donne en effet :

$$V_e = -3\left[\left(\frac{3N}{8\pi}\right)^{1/3} - \left(\frac{3N_0}{8\pi}\right)^{1/3}\right] \simeq -\frac{3}{8\pi}\left(\frac{8\pi}{3N_0}\right)^{2/3}(N - N_0).$$

Le terme de Coulomb vérifie l'équation de Poisson (2) et les mêmes conditions aux limites que précédemment ; finalement :

$$N(E) \simeq N_0(E - V_c - V_e) \simeq N_0(E) - (V_c + V_e)(\partial N_0/\partial E).$$

L'ensemble de ces formules donne $V_P = V_c + V_e = -Zr^{-1}\exp(-qr)$ où q et Z sont donnés par (32 *bis*).

L'écran ainsi calculé est plus concentré que celui obtenu au § 2.4. Ainsi pour le cuivre ($k_M = 0{,}725$), on trouve $q/q_0 = 1{,}72$ pour $\mu = 1$, valeur plus forte que celles du tableau I. Ces dernières étaient les meilleures possibles pour les électrons rapides, avec un potentiel total (échange compris) de la forme $-Zr^{-1}\exp(-qr)$. Le paramètre q de (32 *bis*), lui, est sans doute meilleur pour le calcul des énergies.

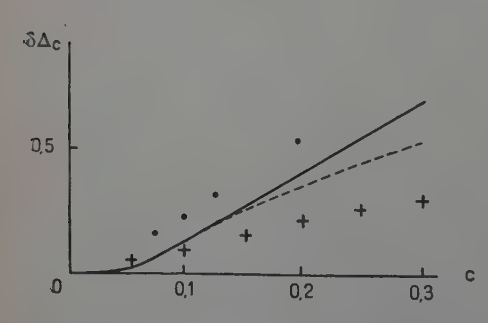


Fig. 17. — Variation de l'énergie de dissolution E_{Zn} dans CuZn avec la concentration en zinc (en eV/At). Croix : valeurs expérimentales. Trait continu : valeurs calculées pour $\mu = 1$. Traits pointillés : valeurs corrigées de la répulsion des ions Cu^+. Points : déplacement de la limite d'absorption optique.

La figure 17 donne $\delta\Delta_c$ pour CuZn ($p = 1$; $k_M = 0{,}725$; $\mu = 1$). $\delta\Delta_c$ est à peu près linéaire pour $c > 0{,}01$. Il est notable aux concentrations c assez fortes, car il est proportionnel à la *dérivée* par rapport à c du déplacement du niveau de Fermi. Sa valeur, bien entendu très rapprochée, est du même ordre, quoique plus forte que les

valeurs déduites par la formule (23) des mesures de Herbenar, Siebert et Duffendack ([28], cf. [88]).

La différence peut être due en partie à ce que les ions Cu^+ voisins d'un atome de zinc sont repoussés par un potentiel perturbateur V plus faible quand la concentration en zinc augmente. Si les $n = 12$ ions Cu^+ sont représentés par des charges ponctuelles $+1$ à distance $b = 4{,}2$ U. A., la petite correction pour $\delta\Delta_c$ est, d'après (6), (7) :

$$-n\delta V_c = -nZ_0 q[1-(qR+1)\,\mathrm{sh}\,qb/qb\exp(qR)]/(qR\,\mathrm{ch}\,qR - \mathrm{sh}\,qR).$$

La courbe corrigée est portée figure 17 en pointillé.

Nous avons aussi négligé le terme élastique $\delta\varepsilon$ et le terme de Van der Waals $-2\delta W$. Tous deux sont négatifs et petits. Le second serait égal à $-2cW_{CuCu}$ et notable si les atomes de zinc étaient disposés au hasard dans l'alliage. Mais nous avons supposé en calculant $\delta\Delta_c$ que les atomes de zinc tendent à s'éviter, et cette hypothèse semble confirmée par l'expérience, nous allons le voir. Le terme de Van der Waals est alors négligeable jusqu'à des concentrations de 20 à 30 o/o.

Interactions entre impuretés. — Nous montrons que le terme dû au déplacement du niveau de Fermi correspond à une *attraction des impuretés entre elles si* $Z < 0$, une *répulsion si* $Z > 0$. Il semble en général prédominant et expliquerait certains faits que nous passons en revue.

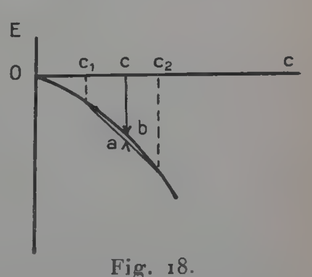


Fig. 18.
Courbure négative de $E(c)$.

Si les atomes de soluté n'interagissaient pas entre eux, leur énergie de solution serait une constante, et l'énergie E de formation de l'alliage serait proportionnelle à la concentration. L'interaction des impuretés déplace le niveau de Fermi de δE_M et ajoute à l'énergie de formation un terme $p\delta E_M$ (pour p électrons par atome dans l'alliage), dont la courbure a le signe de Z (cf. fig. 3). Si cette courbure est négative, l'alliage aura évidemment tendance à se séparer en deux phases de même structure mais de concentrations différentes c_1, c_2 (fig. 18) : les impuretés *s'attirent* pour réduire l'énergie de l'alliage de la quantité *ab*. Cette attraction est compensée, à température finie, par l'effet d'entropie qui tend à disperser les impuretés. Sans faire une étude thermodynamique poussée, on peut prévoir pour chaque concentration une température au-dessus de laquelle on a une seule phase, avec des zones enrichies en impuretés ; et au-dessous de cette température, l'alliage précipite en deux phases de même structure mais de concentrations différentes (cf. [48], [90] pour une étude

thermodynamique quand on se limite aux interactions entre atomes voisins). La formation de ces deux phases peut être un phénomène transitoire avant la précipitation d'une troisième phase plus stable aux fortes concentrations. On expliquerait ainsi la formation des amas de Guinier Preston ([26]; cf. [50]). Si au contraire $\delta\Delta_c$ et Z sont positifs, on s'attend à une *répulsion* des impuretés dans la solution solide, sans formation d'amas.

Ces prévisions semblent se réaliser dans un certain nombre de cas où l'effet de valence dû à $\delta\Delta_c$ semble prédominer. On a les faits suivants :

1° L'énergie de formation de l'alliage a une courbure du signe de Z pour CuZn, AgZn, AgCd, CuAl ($Z > 0$) et pour AlZn, peut-être AlCu ($Z < 0$).

2° Dans la solution solide, les atomes de soluté s'attirent dans AlZn, AlAg ($Z < 0$) (cf. réf. ci-dessus; [2], [50], [91]). Les atomes de carbone interstitiels dans le fer se repoussent [71], [80].

3° Deux phases de même structure cubique à faces centrées coexistent dans AlZn ($Z < 0$). Cet effet est bien dû à la variation avec la concentration de l'énergie de formation de l'alliage (cf. [1], [72]), non à une anomalie de l'entropie comme l'avait suggéré Leigh [45].

4° Les amas de Guinier se forment pour AlCu, AlAg, AlZn, AlMg, AlMgCu, CuNiCo ($Z < 0$), mais pas pour AlSi, MgPb ($Z > 0$) [23].

5° Enfin l'hydrogène ($Z = 1$) se dissout moins dans un alliage quand la teneur en élément polyvalent croît (PdAg [10]; AlSi liquide [63]; alliages liquides de cuivre [29]) (1).

Le facteur de taille, très petit dans un alliage comme AlZn, n'y joue certainement pas de rôle. Il semble au contraire prépondérant dans AuNi et expliquerait que les atomes de soluté s'attirent dans NiAu aussi bien que dans AuNi [73].

D'autres exceptions — formation d'amas de Guinier dans CuBe par exemple — se produisent quand l'un des constituants est un métal noble ou de transition. Les interactions entre couronnes *d* sont alors sans doute importantes.

Déplacement des limites d'absorption X et optiques dans les alliages. — L'atome excité par une absorption X est semblable à une impureté de $Z = 1$ (cf. plus haut). Dans un alliage comme CuZn où l'impureté a un $Z = 1$ *l'énergie d'excitation du métal de base croît donc avec la concentration comme l'énergie de dissolution* E_{Zn} *du soluté.* Ce déplacement est malheureusement trop faible pour être mesuré, et effectivement CuKβ ne donne pas de déplacement appréciable [5].

(1) Wagner [29] explique cette répulsion de façon analogue, mais ne tient compte dans le déplacement du niveau de Fermi que de la variation d'énergie cinétique.

La limite d'absorption *optique* doit se déplacer dans le même sens et d'une quantité plus importante, car l'ion créé $Cu^{+}3d^{9}4s$ est plus étendu que l'ion $Zn^{+}3d^{10}4s$ (car $Cu^{++}3d^{9}$ est moins attractif que $Zn^{++}3d^{10}$). Les points portés figure 17 (d'après [47]) montrent que c'est bien le cas.

III. — CONFIGURATIONS IONIQUES

Nous traitons pour finir deux cas où cette approximation, définie au § 1.2 (fig. 1*c*), peut être valable.

Absorption K du lithium.

On peut imaginer qu'à la fin de l'absorption l'atome excité se trouve sous la forme $Li\,1s2s^2$ (fig. 19). La charge négative due à l'excès d'écran est compensée par une répulsion coulombienne des électrons de conduction. L'énergie de la transition s'obtient par le cycle suivant :

$Li\,1s^22s$	métal.	
$Li\,1s^22s$	atome. . .	$E_L + H_S =$ 2,0 eV
Li^+1s^2	ion. . . .	$E_1 =$ 5,36 eV
Li^+1s2s	ion. . . .	58,72 eV
$Li\,1s2s^2$	atome. . .	$x \simeq -$ 7,6 eV
	Total. .	58,54 eV

H_S est l'énergie de cohésion [42] ; E_L, l'énergie nécessaire pour créer une lacune, est prise égale au quart de H_S. Le premier potentiel d'ionisation E_1 et l'énergie d'excitation $1s^2 \to 1s2s$ de l'ion Li^+ sont pris dans *Atomic energy levels* [1]. Enfin le terme x est inférieur en valeur absolue à l'énergie d'ionisation $1s^2s^2 \to 1s^22s$ pour le béryllium, soit 9,3 eV. Nous l'avons extrapolé à partir de l'énergie d'ionisation $1s^2s^2 \to 1s^22s$ des ions Be, B^+, C^{++} en prenant pour l'ion avec la couronne $1s^2$ les « charges effectives » de Slater [80] : 2,15 ; 2,3 ; 3,3 et 4,3 pour Li, Be, B, C respectivement.

2s²

1s

Fig. 19. — Absorption K du lithium. Configuration ionique.

Nous avons négligé l'interaction de l'atome excité avec les électrons de conduction et les ions voisins. La valeur obtenue 58,5 eV, n'est donc qu'approximative. Elle est du même ordre que l'expérience

(54,7 eV), mais cependant plus forte que celle des orbitales de valence (56 eV, cf. Tableau III). Un calcul du même genre pourrait se faire pour tous les métaux légers, qui sont fortement électropositifs (cf. Introduction). Skinner [76], [77] utilise un cycle analogue en négligeant le terme $H_S + E_L$.

CuPt. — Les règles d'Hume Rothery montrent que les impuretés de valence inférieure à celle de la matrice ne donnent à la bande de conduction que leurs électrons de valence, et donnent donc lieu à configuration ionique. Nous voulons montrer comment, pour CuPt, cette configuration est probablement stabilisée par des forces de Van der Waals.

Nous supposons, en accord avec les mesures magnétiques [89], que le platine se dissout à l'état d'atome Pt $5d^{10}$ par le cycle suivant :

1° créer une lacune dans le cuivre. L'énergie nécessaire E_L est probablement de l'ordre de 1 à 2 eV, valeur mesurée par Kauffman et Koehler [39] pour l'or;

2° vaporiser un atome de platine à l'état $5d^{10}$. L'énergie dépensée est $(H_S)_{Pt} + (5d^9 6s \rightarrow 5d^{10}) = 6{,}25$ eV, car l'état stable du platine est $5d^9 6s$;

3° introduire l'atome de platine dans la lacune. L'énergie nécessaire est la somme d'une petite distorsion $\varepsilon = 0{,}25$ (cf. tableau VI) et d'une interaction de Van der Waals $2W_{CuPt}$ entre l'atome de platine et les ions Cu^+ voisins.

D'où pour l'énergie de dissolution :

$$E_S \simeq E_L + (H^S)_{Pt} + (5d^9 6s \rightarrow 5d^{10}) + \varepsilon + 2W_{CuPt} \simeq (8 + 2W_{CuPt})\,\text{eV}.$$

Le terme de Van der Waals W_{CuPt} est sans doute assez fort pour stabiliser le système et réduire E_S à sa faible valeur expérimentale — 0,25 eV (tableau VI). Une comparaison des énergies de cohésion de l'or et du platine (3,9 et 5,5 eV/atome respectivement) montre en effet que le terme de Van der Waals par atome de métal dans le platine est sans doute au moins aussi fort que dans l'or, soit environ — 1,5 eV. Comme il y a 0,6 trous par atome, le terme entre couronne $3d^{10}$ dans le platine doit être :

$$W_{PtPt} \simeq -1{,}5(0{,}6)^{-2} \simeq -9\ \text{eV}.$$

Finalement :

$$2W_{CuPt} \simeq W_{CuCu} + W_{PtPt} \simeq -10\ \text{eV},$$

l'ordre de grandeur cherché.

APPENDICE

CORRECTION D'ÉCHANGE DANS LES TRANSITIONS X

Nous avions attribué, dans un article antérieur [17], la majeure partie des différences Δ du tableau III au changement d'interaction d'échange des électrons de conduction avec un ion interne lors de son excitation X. Nous montrons ici qu'en fait ce terme est *faible*, probablement pas plus que 0,5 eV pour le lithium et 1 eV pour le béryllium, moindre pour les éléments plus lourds. Son étude est délicate, car on doit employer des fonctions d'onde *orthogonales*. Notre erreur précédente vient de ce que nous avions négligé cette condition.

TABLEAU VII

Valeur expérimentale des doublets $^1S - ^3S$, $^1P - ^3P$, *en eV.*

	He	Li	Be	B
$1s2s$	1,20	2,36	3,9	
$1s2p$	(0,24)	(0,92)	1,74	2,60
$1s^2 2s3s$ . . .			< 0,32	< 0,76
$1s^2 2s2p$ . . .			2,54	4,45

Nous analysons les fonctions d'onde Ψ_F des électrons de conduction à la fin de l'absorption en fonction d'onde Ψ_{nl} relatives à l'atome excité :

$$\Psi_F = \sum_{n,l} a_{nl} \Psi_{nl}. \tag{33}$$

Ψ_{nl} est la fonction d'onde d'un électron de nombres quantiques n, l dans le champ de l'ion excité ($Li^+ 1s2s$; $Be^{++} 1s2s$...). Il serait difficile d'évaluer les coefficients a_{nl}. Mais les développements des énergies d'échange en fonction des a_{nl} (formules 40) ont des coefficients qui décroissent rapidement. La normalisation de Ψ_F donne un ordre de grandeur des a_{nl} de faibles nombres quantiques n, l et permet donc de fixer une limite à l'importance du terme d'échange.

L'énergie d'échange de l'électron de conduction Ψ_F avec un électron d'écran Ψ_i s'écrit [15] avec des notations évidentes :

$$E_e(i) = -\int \Psi_F(1)\Psi_i^*(1)d\tau_1 \int \Psi_F^*(2)\Psi_i(2)r_{12}^{-1}d\tau_2.$$

Nous exprimons d'abord $E_l(i)$ en fonction des énergies d'échange entre les électrons d'écran Ψ_i et les fonctions Ψ_{nl} (équation (35)). Nous calculons ensuite ces termes atomiques.

Utilisant le développement de r_{12} en fonction de r_1 et r_2 (cf. [14]), on a facilement si φ_i et φ_{nl} sont les parties radiales de Ψ_i et Ψ_{nl} :

$$E_e(i) = -\sum_{n,n',l} a_{nl} a^*_{n'l} \int_0^\infty \varphi_{nl}\varphi^*_i 4\pi r^2 dr \int_0^\infty K_l \varphi^*_{n'l}\varphi_i 4\pi r'^2 dr', \tag{34}$$

avec $K_l = r^l_</(2l+1)r^{l+1}_>$, si $r_>$ est le plus grand de r et r' et si φ_i a une symétrie s (cf. [15]).

Les états nl, $n'l$ ont des énergies très différentes si $n' \neq n$. Donc l'un au moins des facteurs d'un produit mixte $a_{nl}a_{n'l}$ est petit. Si ces termes sont négligés, l'énergie d'échange est une combinaison linéaire d'énergies d'échanges « atomiques », que nous notons (i, nl) :

$$E_e(i) = \sum_{n,l} |a_{nl}|^2 (i, nl), \tag{35}$$

avec :

$$(i, nl) = -\int_0^\infty \varphi_{nl}\varphi^*_i 4\pi r^2 dr \int_0^\infty K_l \varphi^*_{nl}\varphi_i 4\pi r'^2 dr'.$$

Pour les ions $(1s)^2 nl$ et $(1s')(2s')(nl')$ où les électrons $1s'$, $2s'$ ont des spins parallèles (règle de Hund, cf. [68]), on a :

$$\left.\begin{aligned} E_e(1s^2) &= 2[\,|a_{2s}|^2(1s, 2s) + |a_{2p}|^2(1s, 2p) + \ldots] \\ E_e(1s', 2s') &= |a'_{2p}|^2(2s', 2p') + |a'_{3s}|^2(2s', 3s') + |a'_{2p}|^2(1s', 2p') + \ldots \end{aligned}\right\} \tag{36}$$

Le terme d'échange cherché est la différence :

$$\Delta_e = E_e(1s', 2s') - E_e(1s^2). \tag{37}$$

Nous évaluons maintenant les termes d'échange atomiques (i, nl). Leur ordre de grandeur peut se déduire de la séparation $^1S - {}^3S$, $^1P - {}^3P$ des doublets des ions des éléments légers, égale au *double* de l'énergie d'échange [62]. Les valeurs du tableau VII sont prises dans *Atomic energy levels* [1].

Pour $1s2p$, $2s2p$, le terme d'échange s'en déduit facilement en modifiant la « charge effective » agissant sur les électrons. Si en effet nous prenons pour ces électrons des fonctions hydrogéniques :

$$\begin{aligned} \varphi_{1s} &= \left(Z^{3/2}_{1s}/\sqrt{\pi}\right) \exp(-Z_{1s}r) \\ \varphi_{2s} &= \left(Z^{3/2}_{2s}/4\sqrt{2\pi}\right)(2 - Z_{2s}r) \exp(-Z_{2s}r/2) \\ \varphi_{2p} &= \left(Z^{5/2}_{2p}/4\sqrt{2\pi}\right) r \exp(-Z_{2p}r/2), \end{aligned}$$

nous obtenons pour les termes d'échange :

$$\left.\begin{aligned} (1s, 2p) &= -(7/24)Z^3_{1s}Z^5_{2p}(Z_{1s} + Z_{2p}/2)^{-7} \\ (2s, 2p) &= -(14 - 98Z_{2s}/\alpha + 185Z^2_{2s}/\alpha^2)Z^3_{2s}Z^5_{2p}/3\alpha^7 \end{aligned}\right\} \tag{38}$$

où :

$$\alpha = Z_{2s} + Z_{2p}.$$

Pour les ions du tableau VII, et si nous employons les « charges effectives » Z_{nl} définies par les règles empiriques de Slater [80] ($Z_{1s} = Z$;

$Z_{2p} = Z - 0{,}85$ pour $1s2p$; $Z_{2s} = Z_{2p} = Z - 2{,}05$ pour $1_s^2 2s2p$, si Z est le nombre atomique), nous trouvons :

$$\left.\begin{aligned}(1s,\ 2p) &= -(7/24)Z^3(Z-0{,}85)^5(1{,}5Z-0{,}425)^{-7}\\ (2s,\ 2p) &= -15(Z-2{,}05)2^{-9}\end{aligned}\right\} \quad (39)$$

Le bon accord avec l'expérience de ces formules simples (fig. 20, 21) justifie l'emploi des formules générales (37) avec les règles de Slater pour corriger les valeurs d'échange quand on passe des ions du tableau VII à ceux de la formule (36). On obtient ainsi les valeurs portées au tableau VIII.

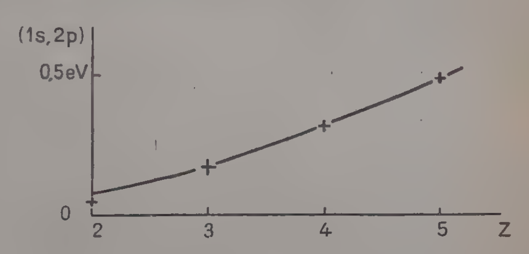


Fig. 20. — Doublet $^1P - {}^3P$ de $1s2p$. Croix : valeurs expérimentales. Trait continu : formule (39).

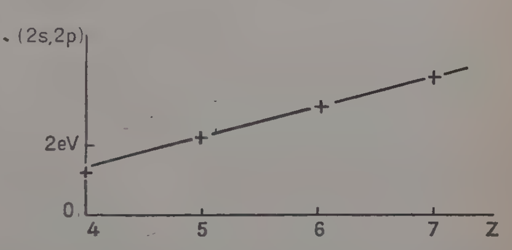


Fig. 21. — Doublet $^1P - {}^3P$ de l'ion $1_s^2 2s2p$. Croix : valeurs expérimentales. Trait continu : formule (39).

Les termes en $1s2s$, $2s3s$ ne peuvent pas s'évaluer de cette façon simple, car les fonctions hydrogéniques correspondantes ne sont pas orthogonales. Mais, par analogie avec les résultats obtenus pour $1s2p$, $2s2p$ et à l'aide du tableau VII, nous avons déduit les valeurs approximatives portées au tableau VIII.

Tableau VIII

Energies d'échange, en eV.

Ions	Echange	Li	Be+
$1s^2 2s$ $1s^2 2p$	$(1s,\ 2s)$ $(1s,\ 2p)$	— 0,85 — 0,25	— 1,35 — 0,40
$1s'2s'2p'$	$(1s',\ 2p')$ $(2s',\ 2p')$	— 0,25 — 1,15	— 0,65 — 2,10
$1s'2s'3s'$	$(2s',\ 3s')$	— 0,15	— 0,30

L'équation (36) donne finalement, en électrons volts :

$$\left.\begin{array}{l} E_e(1s)^2 \simeq -1{,}7 \mid a_{2s} \mid^2 - 0{,}6 \mid a_{2p} \mid^2 + \ldots \\ E_e(1s', 2s') \simeq -1{,}4 \mid a'_{2p} \mid^2 - 0{,}15 \mid a'_{3s} \mid^2 + \ldots \end{array}\right\} \quad (40)$$

pour le lithium et :

$$\begin{array}{l} E_e(1s^2) \simeq -2{,}7 \mid a_{2s} \mid^2 - 0{,}8 \mid a_{2p} \mid^2 + \ldots \\ E_e(1s', 2s') \simeq -2{,}8 \mid a'_{2p} \mid^2 - 0{,}3 \mid a'_{3s} \mid^2 + \ldots \end{array}$$

pour le béryllium. La normalisation de Ψ_F dans un polyèdre atomique donne, d'après (33) :

$$\left.\begin{array}{l} \mid a_{2s} \mid^2 + \mid a_{2p} \mid^2 + \ldots \simeq \frac{1}{2} p \\ \mid a'_{2p} \mid^2 + \mid a'_{3s} \mid^2 + \ldots \simeq \frac{1}{2} p \end{array}\right\} \quad (41)$$

avec $p = 1$ pour le lithium et 2 pour le béryllium. $\mid a_{2s} \mid^2$ et $\mid a'_{2p} \mid^2$ sont évidemment les termes principaux des deux sommes. La substitution de (41) dans (40) montre que *le terme d'échange* cherché $\Delta_e = E_e(1'_s, 2'_s) - E_e(1s)^2$ *est faible,* sans doute inférieur à 0,5 eV pour le lithium et à 1 eV pour le béryllium.

Enfin pour les éléments plus lourds l'énergie d'échange des électrons de conduction avec l'ion interne reste du même ordre de grandeur (— 2,5 eV pour le cuivre d'après Fuchs [21]) Le changement de structure de l'ion interne lors d'une excitation X est relativement moindre. Δ_e doit donc être plus petit.

(Travail effectué au Centre de Recherches métallurgiques de l'École nationale supérieure des Mines).

RÉFÉRENCES

[1] *Atomic energy levels*, 1948, Washington.
[2] B. L. Averbach et al. — *Met. Abstr.*, 1953, **20**, 561.
[3] R. Bacher et S. Goudsmit. — *Atomic energy states*, 1932, New-York.
[4] C. S. Barrett. — *Structure of metals*, 1943, New-York.
[5] J. A. Bearden et H. Friedman. — *Phys. Rev.*, 1940, **58**, 387.
[6] C. E. Birchenall et C. H. Cheng. — *Jl. of Metals*, 1949, 428.
[7] J. Bor. — *Phil. Mag.*, 1953, *sous presse.*
[8] G. Bradfield et H. Pursey. — *Phil. Mag.*, 1953, **44**, 420.
[9] F. C. Brooks. — *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 92.
[10] A. Cohen. — *Zeits. f. Phys.*, 1933, **83**, 291.
[11] E. U. Condon. — *Phys. Rev.*, 1926, **28**, 1182 ; 1928, **32**, 858.
[12] A. H. Cottrell. — *Theoretical structural metallurgy*, 1948, Londres.
[13] C. Crussard. — *Métaux et Corrosion*, 1950, **25**, 203.

[14] H. Eyring, J. Walter et C. E. Kimball. — *Quantum Chemistry*, 1949, New-York.
[15] V. Fock. — *Zeits. f. Phys*,, 1933, **81**, 195.
[16] J. Frank. — *Trans. Farad. Soc.*, 1926, **21**, 536.
[17] J. Friedel. — *Phil. Mag.*, 1952, **43**, 153.
[18] — *Ibid.*, 1115.
[19] — *Proc. Phys. Soc.*, 1952, B **65**, 769.
[20] — *Jl Physique et Rad.*, 1953, **14**, 561.
[21] H. Fuchs. — *Proc. Roy. Soc.*, 1935, A **151**, 585.
[22] — *Ibid.*, 1936, A **153**, 622.
[23] A. H. Geisler. — *Phase transformations in solids*, 1951, 387, NewYork.
[24] J. E. Goldman. — *Rev. Mod. Phys.*, 1953, **25**. 108.
[25] P. Gombas. — *Stat. Theor. d. Atoms*, 1949. **77**, 96, Vienne.
[26] A. Guinier. — *Comptes Rendus*, 1937, **204**, 1115.
[27] D. R. Hartree. — *Proc. Camb. Phil. Soc.*, 1928, **24**, 89.
[28] A. W. Herbenar, C. A. Siebert et O. S. Duffendack. — *Jl. of Metals*, 1950, 323.
[29] W. Himmler. — *Zeits. f. Phys. Chem.*, 1950. **195**, 244.
[30] T. H. Hironé. — *Sci. Rep. Tohoku Univ.*, 1938, **27**, 101.
[31] Y. C. Hsu. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 975.
[32] K. Huang. — *Proc. Phys. Soc.*, 1948, **60**, 161.
[33] W. Hume Rothery. — *The Metallic state*, 1931, Oxford.
[34] W. Hume Rothery et G. V. Raynor. — *Phil. Mag.*, 1938, **26**, 152.
[35] M. A. Jaswon, W. G. Harry et G. V. Raynor. — *Proc. Phys. Soc.*, 1951, B **375**, 177.
[36] J. E. Johnston. — *Proc. Camb. Phil. Soc.*, 1939, **35**, 108.
[37] H. Jones. — *Proc. Roy. Soc.*, 1934, A **144**, 255.
[38] — *Proc. Phys. Soc.*, 1937, **49**, 243.
[39] J. M. Kauffman et J. S. Koehler. — *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 149.
[40] R. H. Kingston. — *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 944.
[41] W. Koester. — *Z. f. Metallkunde*, 1948, **39**, 145, 322.
[42] O. Kubaschewski et E. Ll. Evans. — *Metallurgical thermochemistry*, 1951, Londres.
[43] H. H. Landolt et R. Börnstein. — *Tabellen*, 1931, Berlin.
[44] M. V. Laue. — *Ann. der Phys.*, 1914, **44**, 1197.
[45] R. S. Leigh. — *Phil. Mag.*, 1951, **42**, 876.
[46] J. O. Linde. — *Elektr. Eigensch. d. Verd. Leg. des Kapfers.* Silbers u. Goldes Diss., 1939, Stockholm.
[47] H. Lowry, H. Wilkinson et D. L. Smare. — *Proc. Phys. Soc.*, 1937, **49**, 345.
[48] J. Lumsden. — *Thermodynamics of alloys*, 1952, 312, Londres.
[49] H. S. W. Massey. — *Negative ions*, 1950, Cambridge.
[50] J. L. Meijering. — *Rev. Mét.*, 1952, **49**, 906.
[51] P. M. Morse. — *Rev. Mod. Phys.*, 1932, **4**, 577.
[52] H. M. Morse, L. A. Young et E. S. Haurwitz. — *Phys. Rev.*, 1935, **48**, 948.
[53] N. F. Mott. — *Proc. Phys. Soc.*, 1935, **47**, 571.
[54] — *Proc. Camb. Phil. Soc.*, 1936, **32**, 281.
[55] — *Proc. Roy. Soc.*, 1936, A **156**, 368.
[56] — *Proc. Phys. Soc.*, 1937, **49**, 258.

[57] N. F. Mott et H. Jones. — *Metals and alloys*, 1936, Oxford.
[58] N. F. Mott et H. S. W. Massey. — *Atomic Collisions*, 1949, 31, Oxford.
[59] — *Ibid.*, 45.
[60] — *Ibid.*, 111.
[61] — *Ibid.*, 186.
[62] N. F. Mott et I. N. Sneddon. — *Wave Mechanics*, 1948, 119, Oxford.
[63] K. F. Niessen. — *Physica*, 1939, **6**, 1011.
[64] A. L. Norbury. — *Trans. Farad. Soc.*, 1921, **16**, 570.
[65] Oelsen et Middel. — *Mitt. Kaiser Wilh. Inst. f. Eisenf.*, 1937, **19**, 1.
[66] W. R. Opie et N. J. Grant. — *Jl. of Metals*, 1950, 1237.
[67] L. Pauling. — *Nature of the chemical bond*, 1948, New-York.
[68] L. Pauling et A. H. Wilson. — *Quantum mechanics*, 1935, 246, New-York.
[69] B. I. Pinès. — *Jurnal eksper. i. teor. fiziki*, 1941, **11**, 147.
[70] J. C. Plaskett. — *Ph. d. Thesis*, 1952, Bristol.
[71] F. D. Richardson et W. E. Dennis. — *Trans. Farad. Soc.*, 1953, **49**, 171.
[72] P. S. Rudman, P. A. Flynn et B. L. Averbach. — *Jl. Appl. Phys.*, 1953, **24**, 365.
[73] L. L. Seigle, M. Cohen et B. L. Averbach. — *Jl. of Metals*, 1952, 1320.
[74] S. Shinohara. — *Hokkaido Univ.*, 1953, *non publié.*
[75] C. G. Shull. — 1953, *non publié.*
[76] H. W. B. Skinner. — *Proc. Roy. Soc.*, 1932, A **135**, 84.
[77] — *Ibid.*, 1933, A **140**, 277.
[78] H. W. B. Skinner. — *Phil. Trans. Roy. Soc.*, 1940, **239**, 95.
[79] H. W. B. Skinner et J. E. Johnston. — *Proc. Roy. Soc.*, 1937, A **161**, 420.
[80] J. C. Slater. — *Phys. Rev.*, 1930, **37**, 57.
[81] — *Ibid.*, 1949, **76**, 1592.
[82] — *Ibid.*, 1951, **81**, 385.
[83] J. C. Slater et H. M. Krutter. — *Phys. Rev.*, 1935, **47**, 559.
[84] Smith. — *Jl. of Met.*, 1952, 477.
[85] — *Jl. Amer. Chem. Soc.*, 1946, **68**, 1163.
[86] C. J. Smithells. — *Metals reference book*, 1949, Londres.
[87] S. Timoschenko. — *Theory of elasticity*, 1934, 324, New-York.
[88] E. E. Underwood et B. L. Averbach. — *Jl. of Met.*, 1952, 1220.
[89] E. Vogt. — *Z. f. Metallkunde*, 1951, **42**, 155.
[90] C. Wagner. — *Thermodynamics of alloys*, 1952, New-York.
[91] Walker, Blin et A. Guinier. — *Comptes Rendus*, 1952, **235**, 254.
[92] G. N. Watson. — *Bessel functions*, 1922, 363, Cambridge.
[93] E. P. Wohlfarth. — *Proc. Roy. Soc.*, 1949, A **195**, 434.

CONTRIBUTION A L'ÉTUDE SPECTRALE DE L'ACIDE FLUORHYDRIQUE [1]

Par Ebrahim SAFARI

SOMMAIRE. — Nous avons étudié l'absorption de l'acide fluorhydrique gazeux dans l'ultra-violet moyen et dans la région de Schumann, ainsi que l'effet de la température sur cette dernière région.

Nous avons de même étudié l'effet Raman et l'absorption dans l'infra-rouge de l'acide liquéfié. Enfin nous avons vérifié les travaux antérieurs sur l'absorption de l'acide gazeux dans l'infra-rouge.

Dans l'ultra-violet moyen, nous avons constaté, qu'au moins jusqu'à 225 cm. d'épaisseur et 760 mm./Hg de pression, le gaz fluorhydrique est complètement transparent dans tout l'ultra-violet proche et moyen. Dans la région de Schumann nous avons exploré une région d'absorption relativement faible, débutant de 1 650 Å et s'étendant vers les courtes longueurs d'onde. Ce spectre a été interprété par la méthode de la réflexion, moyennant certaines hypothèses ; la courbe d'énergie potentielle de l'état excité a été obtenue, et nous en avons déduit une énergie de dissociation qui concorde avec les estimations thermochimiques. L'effet de la température, sur l'absorption dans cette région, nous a donné des résultats non comparables à ceux d'autres hydracides halogénés ; ces résultats nous ont fait penser que même à 100° C une partie des molécules reste à l'état associé.

Dans l'étude du spectre Raman de l'acide liquéfié, nos résultats ont d'abord confirmé les données antérieures ; de plus sur certaines plaques, moins exposées, et excitées par 3 650 Å, nous avons observé l'existence d'un faible palier, qui peut être dû à un effet Raman.

La fluorescence a rendu difficile l'étude du spectre Raman de l'acide liquéfié, excité par les radiations habituelles ; il nous semble probable, qu'elle pourrait être facilitée par l'emploi de la raie de résonance du mercure (2 537 Å).

Dans l'infra-rouge, nos essais faits sur l'acide gazeux, confirment complètement les travaux antérieurs.

Nous avons ensuite étudié l'absorption de l'acide liquéfié, entre 0,95 μ et 4,25 μ. Dans cette région nous avons décelé quatre bandes dont les maxima se trouvent à : 9 950 cm^{-1}, 5 220 cm^{-1}, 4 150 cm^{-1} et 3 078 cm^{-1}. Une interprétation complète des résultats semble difficile, avec les seules données actuelles. Toutefois, les résultats nouveaux que nous avons obtenus, nous ont permis de déduire quelques conclusions relatives à l'association et à la structure moléculaire de ce corps.

(1) Thèse présentée le 26 mai 1951 à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques.

L'étude du spectre infra-rouge de l'acide liquéfié nous a montré que la structure du groupe FHF est tres différente de celle du même groupe dans le cristal de KHF_2 ; dans le gaz, la structure est vraisemblablement non symétrique. En outre, d'après les résultats de l'infra-rouge et de l'effet Raman, le liquide doit contenir une faible quantité de molécules FH très peu perturbées ; cette quantité est approximativement la même que, dans le gaz, au voisinage des conditions normales ; cela montre que l'association n'est guère augmentée par la condensation du gaz en liquide [1].

INTRODUCTION

Les propriétés physiques de l'acide fluorhydrique ont fait l'objet d'un certain nombre d'études : cela s'explique par son importance industrielle, par la place qu'il occupe parmi les hydracides, et par les curieuses anomalies qu'il présente par rapport aux autres hydracides ; cependant lorsqu'on considère l'ensemble des résultats expérimentaux obtenus, on constate qu'il n'existe pas un parfait accord entre ces résultats et les interprétations dont ils ont fait l'objet.

Parmi tous les travaux effectués sur l'acide gazeux, ceux concernant l'absorption dans l'ultra-violet nous paraissent plus particulièrement lacunaires. En effet, en parcourant la littérature, nous avons constaté que si le nombre d'observations sur le spectre d'absorption du gaz fluorhydrique dans l'infra-rouge est relativement élevé, cette étude dans l'ultra-violet est beaucoup plus rare. Dans toute la littérature dont nous disposions, nous n'avons pu trouver qu'un seul essai de l'absorption de cette substance dans l'ultra-violet moyen (24).

Si l'absorption dans l'infra-rouge se prête bien à la vérification des théories sur la structure moléculaire, celle de l'absorption dans la région des courtes longueurs d'onde constitue une base sérieuse pour vérifier les idées théoriques relatives à la liaison chimique et pour en suggérer de nouvelles. C'est dans ce but qu'il nous a semblé nécessaire d'apporter une contribution à ces questions.

Deux autres raisons nous ont encouragé à choisir l'étude du présent sujet :

1° Puisque l'absorption dans l'ultra-violet et la région de Schumann des acides HCl, HBr et HI (à l'état gazeux) (21) (33) ainsi que celle de l'acide chlorhydrique à l'état liquide et son spectre Raman (33) (55) ont été étudiées et que celle de HF restait à faire, il nous a semblé qu'il y avait là une importante lacune à combler.

2° Cet acide étant normalement à l'état associé et montrant des différences de propriétés physiques et chimiques avec ses analogues, on pouvait penser qu'il y aurait des anomalies sérieuses dans son spectre d'absorption ainsi que dans son spectre Raman.

[1] Une brève description de certains de nos résultats a été déjà faite (69) (70) (71) (72).

Au début de notre travail nous nous trouvions en face de grosses difficultés; choix de matériaux inattaquables par l'acide, manque de fenêtres utilisables, manque de joints inertes à l'action de l'acide, etc., etc. C'est pourquoi nous avons été contraints d'employer une grande partie de notre temps à surmonter ces difficultés qui s'opposaient à la réalisation des expériences projetées.

Notre travail porte sur l'étude quantitative de l'absorption du gaz fluorhydrique dans l'ultra-violet moyen et dans la région de Schumann. Nous avons également étudié l'effet de la température sur l'absorption du gaz fluorhydrique dans la région de Schumann.

Dans l'infra-rouge nous avons fait quelques mesures sur l'acide à l'état gazeux (pour vérifier les résultats des travaux antérieurs) et également sur l'acide à l'état liquide. Enfin, nous avons effectué quelques essais sur l'effet Raman de l'acide liquéfié.

Mais l'étude plus complète du liquide, l'examen détaillé du spectre infra-rouge du gaz, ainsi que quelques études supplémentaires dans l'ultra-violet lointain seraient indispensables pour obtenir une interprétation sûre de la structure moléculaire de l'acide fluorhydrique. L'importance de ces études découle de nos résultats ainsi qu'on le verra plus loin, et il sera possible de les effectuer grâce aux techniques que nous avons mises au point.

Nous souhaitons que ce mémoire, bien qu'incomplet, montre l'existence et l'importance des anomalies de l'acide fluorhydrique et suscite de nouvelles recherches sur cette substance.

HISTORIQUE

Nous rappelons, ci-dessous, les travaux et les hypothèses faits jusqu'ici sur l'association et sur la structure moléculaire de l'acide fluorhydrique.

Les travaux, sur l'association du gaz fluorhydrique, sont nombreux (2, 4, 27, 28, 50, 52, 59, 60, 61, 62, 63, etc.). D'après Simons et Hildebrand (27), Latimer et Rodebush (62) et Long et ses collaborateurs (28), on doit penser que l'acide gazeux, dans les conditions normales, se trouve à un état d'équilibre dans lequel toutes sortes de polymères, de $(FH)^1$ à $(FH)^6$ existent, et que l'hexamère reste le polymère dominant. Cette hypothèse, qui est principalement basée sur la mesure de densité de vapeur, prévoit que vers 100° C et à la pression atmosphérique, l'acide est complètement dissocié, et que son poids moléculaire tend vers 120 à mesure que la température diminue.

Si le nombre des études, portant sur l'acide gazeux, est assez grand, on ne rencontre que de rares commentaires, concernant l'acide liquéfié (67, 68).

En ce qui concerne la structure moléculaire du gaz fluorhydrique, deux idées ont été émises par les expérimentateurs :

D'une part Simons et Hildebrand (27), en interprétant les variations de la densité de vapeur, en fonction de la température et de la pression ont été conduits à faire l'hypothèse d'un simple équilibre : $6FH = (FH)^6$, en acceptant pour l'hexamère la forme cyclique.

D'autre part, Bauer, Beach et Simons (50), par l'étude à la diffraction électronique, réfutent l'hypothèse de Simons et Hildebrand (27) et acceptent une configuration en zigzag, dans laquelle toutes sortes de polymères existent à l'état d'équilibre.

D'après cette étude, l'atome d'hydrogène est situé entre les deux atomes de fluor ; la structure de l'élément linéaire F-H-F est dissymétrique, l'hydrogène est à 1 Å de l'atome de fluor et de 1,55 Å de l'atome de fluor associé, et la distance des deux atomes consécutifs de fluor est donc 2,55 Å (cette distance est de 2,25 Å pour l'ion $(FHF)^-$ (58, 65, 66)) ; enfin l'angle $\widehat{FFF}$ est voisin de 140° (cet angle étant de 134° pour l'acide solidifié, d'après des études de diffraction de rayons X (51)). Notons enfin que l'hypothèse de chaînes non fermées a été confirmée par une étude de Bensi et Smyth (64), basée sur la mesure des constantes diélectriques.

PREMIÈRE PARTIE

ABSORPTION DU GAZ FLUORHYDRIQUE DANS L'ULTRA-VIOLET

DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

A. — Préparation et purification de l'acide fluorhydrique.

La préparation de l'acide fluorhydrique est difficile, par suite du caractère hygroscopique énergique de ce corps et de l'impossibilité de faire intervenir des déshydratants comme l'anhydride phosphorique qui réagit avec lui.

Frémy (1) fut le premier à préparer l'acide par distillation du bifluorure de potassium. Après lui Gore (2), prépara cette substance par la même méthode. Simons (3) a remarqué que la fusion du sel (opération faite par Gore (2), Thorpe et Hambly (4), Ruff et Plato (5))

n'est pas suffisante pour atteindre une déshydratation complète. C'est pourquoi, avant la distillation, il desséchait le sel par électrolyse.

Pour la préparation de l'acide fluorhydrique, nous avons suivi la méthode de Frémy (1), en utilisant un dispositif de distillation semblable à celui de Simons (3).

Déshydratation du sel. — La déshydratation du sel a été faite par une méthode dont nous donnons les détails ci-dessous :

Nous avons d'abord recristallisé le sel en le dissolvant dans l'eau distillée et bouillante. Le sel ainsi obtenu est mis dans un vase en cuivre (A) (fig. 1), d'ouverture conique qui peut être fermé herméti-

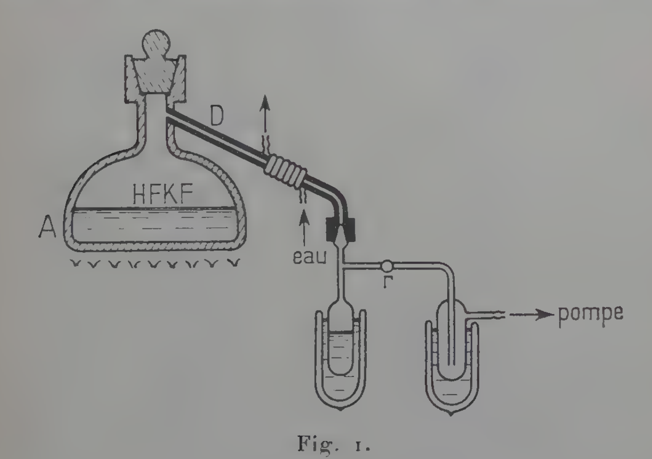


Fig. 1.

quement au moyen d'un bouchon en cuivre. Le tube D est refroidi par une circulation d'eau et il est branché sur un dispositif de dessiccation comportant des pièges à air liquide et à charbon végétal. On remplit le vase à moitié ; on le chauffe à 160° environ et on pompe tout l'ensemble au moyen d'une pompe à palette. Le point de fusion du sel étant entre 215° et 225° (6), seule l'eau contenue dans le sel est éliminée par le pompage. Pour éliminer les dernières traces d'humidité, on ferme le robinet *r* et on arrête la pompe, puis on pompe le vase au moyen du piège à charbon en plongeant celui-ci dans l'air liquide.

Préparation de l'acide fluorhydrique. — Comme nous l'avons déjà dit, l'acide a été préparé par le chauffage direct du bifluorure de potassium. Le dispositif employé pour la distillation de l'acide est semblable à celui de Simons (3) (fig. 2) ; il est composé des parties suivantes : le récipient destiné au chauffage du sel, les canalisations, les robinets et le réservoir. Les robinets ayant une disposition particulière, seront décrits ultérieurement.

Sauf les robinets, toutes les autres parties du dispositif sont en cuivre rouge vu la résistance de ce métal à l'attaque de l'acide fluorhydrique, même aux températures élevées (7). Le récipient R qui contient le sel est formé d'un cylindre épais, dont la partie supérieure est terminée par une flasque assez large A. Sur cette partie s'applique une autre flasque identique B terminée par un tube assez large. Ce tube a une longueur voisine de 1 m., en son milieu est brasé un petit cylindre C dans lequel on introduit de la tournure de cuivre. A l'extrémité D de ce tube est branché un dispositif à double canali-

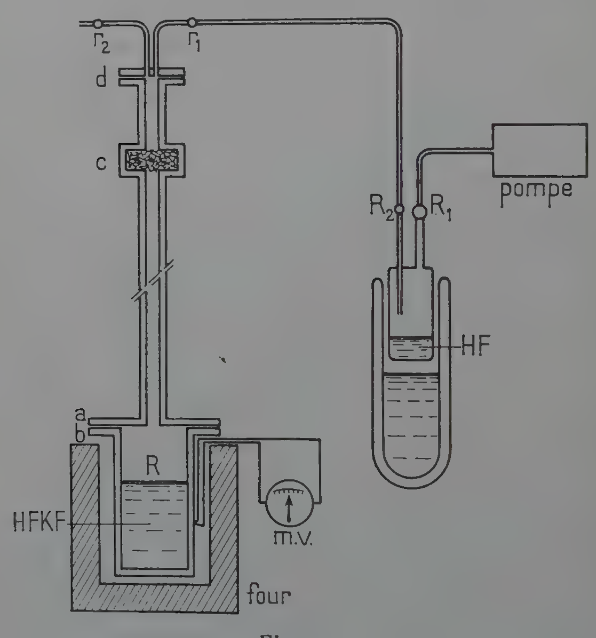


Fig. 2.

sation, l'une menant au réservoir et l'autre à l'atmosphère. Deux robinets r_1, r_2, à boisseaux rodés en cuivre, permettent de mettre la chaudière en communication, soit avec le réservoir, soit avec l'atmosphère. Les flasques A et B sont serrées l'une contre l'autre par des pinces assez fortes en U et l'étanchéité est assurée par une rondelle métalloplastique en cuivre rouge interposée entre elles.

Pour le serrage de la partie D, nous avons employé le joint en « téflon ». Ce nouveau plastique américain, fabriqué par la Compagnie « Dupont de Nemours » est pratiquement inattaquable à l'action de l'acide fluorhydrique même à des températures relativement

élevées (jusqu'à 300° C). Nous chauffons le sel au moyen d'un four électrique ; la température de la chaudière est mesurée par un couple thermoélectrique.

La tournure du cuivre mise dans le cylindre C sert simplement à arrêter les parcelles de sel projetées dans le tube lors du chauffage.

Le réservoir D est composé d'un cylindre de dimensions moyennes, terminé par deux tubes en cuivre ; l'un des tubes se prolonge jusqu'au milieu du cylindre ; c'est par ce tube que l'acide vient se rassembler dans le réservoir ; l'autre tube est muni d'un robinet.

On vide l'appareil, on ferme le robinet R_1 et on continue à chauffer le sel. Le point de fusion du bifluorure de potassium n'est pas nettement défini ; on sait qu'il fond entre 215° et 225° C. Vers 400° C la pression de vapeur du gaz fluorhydrique dégagé atteint une atmosphère. C'est à partir de ce moment qu'il faut le distiller. Il est évident que par suite du dégagement du gaz, le composé s'appauvrit en HF et que le dégagement tend à s'arrêter. Pour empêcher cet arrêt, il faut augmenter continuellement la température jusqu'à 504°. A 504° C, le sel fondu est saturé en fluorure de potassium et à mesure que l'acide fluorhydrique se dégage l'excès de fluorure de potassium précipite à l'état solide ; c'est-à-dire que durant le dégagement de l'acide la composition du corps en fusion ne change pas et que la température reste pratiquement constante.

L'acide ainsi obtenu n'est pas recueilli immédiatement dans le réservoir ; on laisse échapper d'abord une bonne partie du gaz dégagé dans l'air, en ouvrant le robinet r_2, ce qui garantit la propreté de l'acide ; on ferme ensuite le robinet et on introduit le réservoir dans un long vase de Dewar, au fond duquel on a versé un peu d'air ou d'azote liquide. L'évaporation de l'air ou de l'azote liquide refroidit le réservoir et l'acide se condense très facilement (point d'ébullition de HF : 19°4 C).

La fin de la réaction se manifeste par le refroidissement du tube d'arrivée du gaz, de plus à la fin de la réaction le fond du récipient R commence à rougir.

Détermination de la quantité d'acide contenue dans le réservoir. — Pour déterminer la quantité d'acide condensé dans le réservoir, nous avons imaginé plusieurs méthodes. Ces méthodes consistent à mesurer :

1. Les variations de résistance d'un fil mince en platine introduit dans le réservoir.

2. Les variations de self d'un enroulement fait autour du réservoir dans lequel flotte un cylindre creux en Ni ou en Fe.

3. Le poids initial et final du réservoir.

C'est cette dernière méthode que nous avons choisie dans nos expériences.

B. — Matériaux résistants à l'action de l'acide fluorhydrique.

a) Métaux. — Quand l'acide est anhydre et pur (à l'état liquide), il est sans action sur la plupart des métaux et dans ces conditions, il ressemble beaucoup à l'eau. Il agit sur les métaux alcalins, mais il est sans action sur l'Al et le Mg. En l'absence d'oxygène ou d'autres agents oxydants, il n'attaque ni Cu, ni Fe, ni Ni. Les alliages comme l'acier inoxydable, le monel, résistent entièrement à son action. Le laiton n'est pas attaqué par l'acide complètement anhydre (gazeux ou liquide), mais la moindre trace d'humidité ou d'oxygène provoque l'attaque. Dans les usines des Etats-Unis où l'on fabrique de l'acide fluorhydrique en grande quantité, les réservoirs sont en cuivre ou en acier inoxydable. Après le platine qui est généralement abandonné à cause de son prix élevé, c'est le cuivre qui a donné les résultats les plus satisfaisants. Pourtant on choisit l'acier inoxydable à cause de sa résistance mécanique et de son inaltérabilité en présence d'air (8). D'après la littérature (9), le gaz pur est sans action sur l'argent, mais nous avons remarqué durant nos expériences que l'argent, en présence de l'air, est plus ou moins attaqué par cet acide.

Pour la distillation de l'acide nous disposions des appareils en cuivre rouge et, pour les mesures, nous avions un dispositif en acier inoxydable.

b) Les corps composés. — En ce qui concerne les corps composés, il faut noter que la plupart de ces corps sont violemment attaqués par l'acide fluorhydrique; verre, quartz, porcelaine, matières réfractaires et tous les composés analogues sont rapidement attaqués (10).

La fluorine ainsi que le fluorure de lithium, excellentes matières pour l'étude des spectres dans l'ultra-violet, sont attaqués rapidement par l'acide fluorhydrique. Enfin toutes les substances contenant de la cellulose et toutes les résines, les gommes et la plupart des matières plastiques synthétiques ou naturelles sont attaquées par l'acide anhydre ou fortement concentré du fait de la déshydratation de ces corps.

c) Corindon. — Un des rares corps transparents, complètement inattaquables à l'acide fluorhydrique, est le corindon ou saphir blanc; nous en parlerons en traitant du problème des fenêtres.

d) Téflon. — Ainsi que nous l'avons déjà signalé, la seule substance qui peut résister entièrement à l'attaque de l'acide fluorhydrique gazeux, liquide, froid, chaud et qui peut en même temps être utilisée comme joint est le téflon. Cette nouvelle substance organique fabriquée récemment aux Etats-Unis est le tétrafluoroéthylène polymérisé

entre 20° et 100° C, et sous une pression de 70 kg./cm², en contact avec de l'eau et certaines matières alcalines (11) (23). C'est un corps qui résiste bien jusqu'à 300° C, sans se décomposer. Nous l'avons employé avec beaucoup de succès, comme joint, pour la jonction des tubes et pour le serrage des fenêtres contre les cuves. Dans l'étude d'effet Raman de l'acide fluorhydrique liquide, le téflon est resté plus de quinze jours en contact direct avec l'acide, et à la fin de la manipulation, nous avons constaté qu'il était resté absolument intact. De plus, nous avons introduit des parcelles de téflon soigneusement nettoyées dans la cuve et nous avons envoyé de l'acide, et après une heure, le spectre du gaz était exactement le même qu'au début.

Le téflon est livré dans le commerce soit en plaques, soit en barres. Malheureusement, nous n'avons pu disposer que d'une quantité très limitée de cette substance. Le téflon est très facilement travaillé au couteau et à la lime et d'après les travaux de Cloud et Philp (12) sa tension de vapeur est beaucoup plus petite que celle du caoutchouc.

e) Fluorothène. — Signalons enfin que le fluorothène ou polytrifluochloroéthylène, substance thermoplastique,, tout récemment fabriquée aux Etats-Unis, peut-être très utile dans l'étude de l'effet Raman ou le spectre infra-rouge de l'acide fluorhydrique (13). Cette substance peut être utilisée pour la fabrication de la cuve et de la fenêtre ; sous une épaisseur de 1,5 mm, elle aurait une excellente transparence pour le visible (90 o/o), transparence qui descendrait à 30 o/o en passant de 4 000 Å à 2 500 Å (48).

C. — Fenêtres et cuves.

a) Fenêtres. — Dès le début de notre travail, nous avons choisi comme fenêtre le corindon artificiel ou saphir blanc. Cette substance est inattaquable à l'acide fluorhydrique même à chaud. L'emploi de ce corps pour l'étude de l'acide fluorhydrique a été signalé par Vodar, Freymann et Yeou Ta (14) et par Freed, Murry et Rosenbaum (15). Ces derniers expérimentateurs ont gardé le corindon durant 15 heures en contact avec l'acide fluorhydrique.

Le corindon ne montre pas d'absorption notable entre 1 850 Å et 2,5 μ et il est transparent jusqu'à 1 435 Å environ ; avec des échantillons bien choisis et une épaisseur moyenne, l'absorption dans la région de Schumann n'est pas assez grande pour empêcher son utilisation (16).

Pour trouver le maximum de la courbe d'absorption de l'acide fluorhydrique (qui se trouve au delà de 1 500 Å, limite de transparence du corindon), nous avons essayé une seule fois des fenêtres en fluo-

rine, mais l'attaque rapide de l'acide sur la fluorine a rendu l'expérience inutile.

Pour surmonter cette double difficulté : avoir des fenêtres qui soient transparentes au delà de 1 500 Å et en même temps inattaquables à l'acide fluorhydrique, nous avons imaginé de les réaliser par l'un des procédés suivants :

Déposer une couche mince d'alumine sur une lame de fluorine soit en évaporant de l'aluminium et en l'oxydant soit en évaporant directement l'alumine sur des fenêtres en fluorine.

Une méthode qui nous paraît moins sûre consiste à recouvrir une lame de fluorine d'une couche très mince (semi-transparente) de platine par pulvérisation cathodique. Toutes ces méthodes ne donneront vraisemblablement qu'une protection temporaire, mais qui pourrait être suffisante pour permettre la prise de quelques spectres.

Collage des fenêtres. — Si les fenêtres étaient parfaitement planes, on pourrait obtenir l'étanchéité en faisant « le contact optique » entre la fenêtre et la cuve ; mais cela n'a pas été possible dans le cas du corindon qui n'est plan qu'à quelques franges près ; c'est pourquoi pour le collage des fenêtres, nous avons essayé les méthodes suivantes : collage par dépôt électrolytique, picéinage, vernissage et enfin serrage avec joints en téflon. La méthode électrolytique n'étant pas complètement au point, nous en donnerons ci-dessous une simple analyse.

Méthode électrolytique. — On met d'abord une couche très mince d'argent colloïdal sur les bords de la fenêtre, puis on la fixe à un dispositif tournant, on appuie très légèrement un pinceau imbibé d'argent colloïdal sur un point du bord de la fenêtre ; de cette manière on arrive très facilement à avoir une couche très mince et homogène.

Une fois que la couche est complètement desséchée (après une heure au moins) on la porte à une température assez élevée (500°-600°) au moyen d'un four électrique ; à cette température, le solvant s'évapore, la réduction s'opère et il reste un dépôt d'argent. On rode la partie métallisée de la fenêtre sur un verre dépoli, pour avoir une surface relativement plane. On applique alors la partie métallisée contre la cuve, on la serre au moyen de quelques ressorts et on dépose à la partie commune de la fenêtre et de la cuve de l'argent par la méthode électrolytique. Cette méthode qui avait été essayée avant nous ne nous a pas donné satisfaction, car l'étanchéité n'était pas parfaite. Nous croyons qu'en remplaçant les fenêtres plates par des fenêtres coniques et en les faisant entrer dans une cuve à ouvertures coniques et soigneusement ajustées, on peut arriver suivant cette méthode à un résultat définitif. Des travaux dans cette direction ont été poursuivis par d'autres travailleurs du laboratoire qui ont déjà obtenu des résultats satisfaisants.

Picéinage. — Le collage à la picéine, sur le bord externe seulement, pour les cuves sans dispositif chauffant, nous a donné des résultats satisfaisants.

Vernissage et jonction au téflon. — Dans le cas où on voulait chauffer le gaz fluorhydrique, les fenêtres étaient collées, soit par le vernis, dit « glyptal », soit par simple serrage contre la cuve, en utilisant des joints en téflon ; ce dernier procédé était le seul satisfaisant.

L'emploi des joints en téflon nous a empêché de porter le gaz au delà de certaines limites de température (nous sommes montés à 165° C).

Remarquons d'ailleurs que nous avons réalisé une cuve à dispositif chauffant permettant de monter à des températures plus élevées, dans laquelle les joints sont supprimés.

Pour le serrage des fenêtres, les deux extrémités de la cuve étaient filetées pour permettre de visser des bouchons appropriés. L'obtention de l'étanchéité étant délicate, nous avons réalisé un dispositif permettant le changement de la cuve sans démonter les fenêtres. Ce dispositif a été réalisé par l'emploi d'un double bouchon. La figure 4 donne le schéma de ce montage.

b) Cuves. — Les cuves dont nous disposions étaient faites pour l'étude du gaz et du liquide. Les cuves pour l'étude du gaz étaient sans ou avec dispositif chauffant.

Les cuves sans dispositif chauffant ont été faites en argent, en platine ou en acier inoxydable. Elles étaient constituées par un tube de 12 mm. de diamètre intérieur, muni d'un autre tube brasé sur ses côtés pour l'arrivée du gaz, et d'une collerette à chaque extrémité pour l'application de la fenêtre (fig. 3). Nous disposions d'une série de cuves de 5 mm., 50 cm., 100 cm. (en argent), 1 cm., 5 cm. (en platine ou en cuivre chemisé de platine) et de 225 cm (en acier inoxydable).

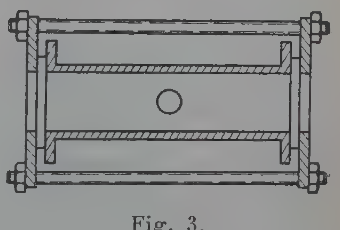


Fig. 3.

Pour l'étude de l'absorption du gaz fluorhydrique en fonction de la température, les cuves étaient chauffées soit à l'intérieur d'un four électrique soit en faisant un enroulement direct sur leur partie externe.

Pour les expériences faites dans le vide, la cuve étant placée à l'intérieur de l'appareil dispersif, le chauffage s'effectuait par enroulement direct sur la cuve ; des feuilles minces de mica assuraient l'isolement des spires. Pour l'homogénéité de la température, l'extérieur de la cuve était protégé par une feuille d'aluminium mince entourant l'enroulement chauffant et formant écran.

Signalons enfin que pour l'étude de l'effet de la température sur l'acide fluorhydrique gazeux, nous avons réalisé deux autres cuves

dans lesquelles tout élément susceptible de produire des impuretés (comme vernis, brasure, etc...) était éliminé. L'une de ces cuves a été employée jusqu'à 163° C. Cette cuve dont la figure 4 montre le schéma est tournée d'un seul bloc en acier inoxydable. Le tube d'arrivée du gaz est vissé sur la cuve, les fenêtres sont serrées contre la cuve au moyen des bouchons filetés déjà décrits. L'étanchéité du collage des fenêtres et celle du branchement du tube d'arrivée du gaz étaient assurées par des joints en téflon.

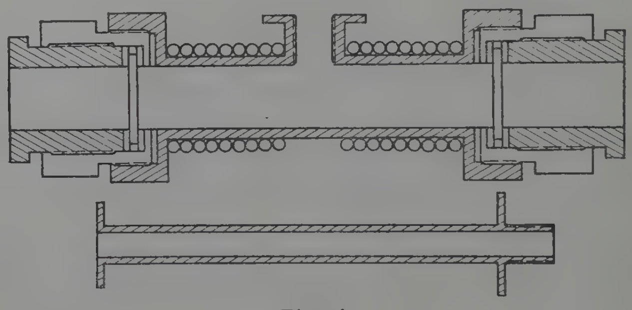


Fig. 4.

L'autre cuve, qui était destinée aux températures plus élevées, est formée comme la première d'un seul bloc d'acier inoxydable tourné et placé à l'intérieur d'un cylindre en tôle, suivant son axe (fig. 5). Le gaz fluorhydrique peut arriver et sortir par deux tubes également en acier qui se vissent sur la cuve, puisqu'on n'a pas voulu introduire de corps étranger en contact avec l'acide ; les jonctions intérieures sont assurées par simple vissage, sans emploi de joints. Pour éliminer le plus possible les fuites, les extrémités des tubes d'entrée et de sortie sont coniques et se serrent contre la paroi du cylindre. Les parties supérieures de ces tubes où se branchent les tubes de canalisation consistent en l'ajustage d'une série de raccordements coniques, dispositif qui permet d'avoir une étanchéité suffisante. De plus, étant donné que ces parties ne sont pas très chaudes, vu la mauvaise conductibilité de l'acier, on peut toujours utiliser des joints coniques en téflon. Les fenêtres en corindon sont simplement appliquées au moyen de deux écrous, aux deux extrémités de la cuve.

Le cylindre extérieur est terminé par deux extrémités filetées sur lesquelles se fixent deux fenêtres de fluorine. Un jeu de filetages et l'emploi des joints soit en téflon soit en matière métalloplastique assurent l'étanchéité de l'appareil. Une circulation d'hydrogène, à une pression un peu supérieure à la pression de l'acide, assure l'étanchéité de la cuve et empêche toute attaque de la fluorine par l'acide. L'arrivée et la sortie de l'hydrogène se font par deux tubes assez gros brasés sur la partie externe de la chemise. C'est par un de ces tubes

que passent le fil destiné à alimenter l'enroulement ainsi que les fils du couple thermoélectrique brasés sur la partie externe de la cuve.

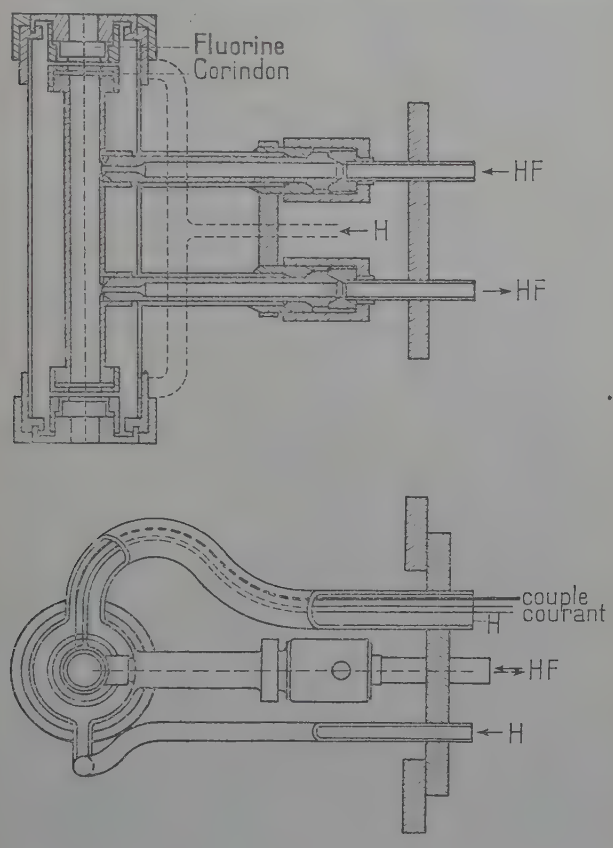


Fig. 5.

Cuves pour l'acide liquéfié. — Nous avons réalisé trois cuves pour l'étude de l'acide fluorhydrique liquéfié. Elles sont de 1, 5 et 10 mm. d'épaisseur. La cuve de 5 mm. est en argent, mais les deux autres sont l'une en platine, l'autre en cuivre chemisé de platine. Ces cuves sont faites de telle sorte qu'on puisse les employer soit dans l'air, soit dans le vide ; ci-dessous nous en donnons la description :

1) *Cuve de 1 mm.* — La figure 6 montre le schéma de cette cuve. Elle est composée d'un cylindre en platine de 4 mm. d'épaisseur (*a*) ; dans ce cylindre on dispose les deux fenêtres (de 1, 5 mm. chacune) et entre ces fenêtres on interpose une cale de 1 mm. également en platine, ayant la forme d'une rondelle découpée suivant un secteur (*b*).

Ce cylindre est muni d'un tube pour l'arrivée du gaz (*c*). Ce dispositif peut être serré dans un corps cylindrique fileté intérieurement. L'étanchéité est assurée par deux joints en téflon disposés aux deux extrémités du cylindre en platine.

Un dispositif spécial est réalisé pour le refroidissement de la cuve. Le corps est placé dans une boîte en laiton. Cette boîte est terminée par un tube assez large (23 cm.) en maillechort mince. Pour l'étan-

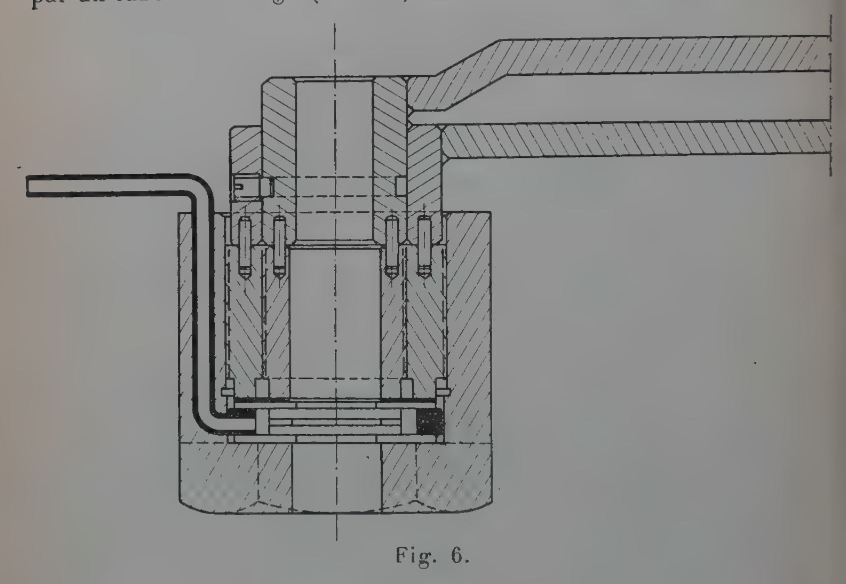


Fig. 6.

chéité on a soudé le cylindre et la boîte ensemble (fig. 7). Quand on fait des études dans le vide, on introduit la boîte dans la chambre d'absorption du spectrographe, le tube externe est picéiné sur la flasque de la tourelle. On met une substance réfrigérante dans la boîte (un mélange d'éther et de neige carbonique ou l'azote liquide) ; de cette manière, la cuve est refroidie et l'acide se condense facilement. La température est mesurée par un couple thermoélectrique soudé sur le corps du cylindre.

Nous avons aussi utilisé cette cuve et son dispositif réfrigérant dans l'air suivant une technique identique. Pour empêcher la formation du givre sur les fenêtres par suite de l'abaissement de la température, on picéine sur chaque fenêtre un petit tube en verre terminé par une collerette, sur laquelle une fenêtre en quartz est fixée.

2) *Cuve de 5 mm.* — La cuve de 5 mm. est une cuve en argent (fig. 8) ; c'est un cylindre de 5 mm. de hauteur et de 22 mm. de diamètre, il est percé d'un trou de 12 mm., sur lequel un tube mince, également en argent, est brasé.

Ce cylindre est extérieurement soudé sur un disque en cuivre rouge

ui lui-même est brasé à l'intérieur d'une boîte en laiton. Cette boîte st munie d'un tube en maillechort assez large. Un couple thermo-électrique est brasé sur le disque en cuivre. Le procédé de refroidissement est le même que pour la cuve de 1 mm. décrit plus haut.

3) *Cuve de 10 mm.* — La cuve de 10 mm. est une simple cuve en cuivre chemisée intérieurement par une feuille mince en platine (1/10 mm.). Le tube d'arrivée du gaz est également en platine.

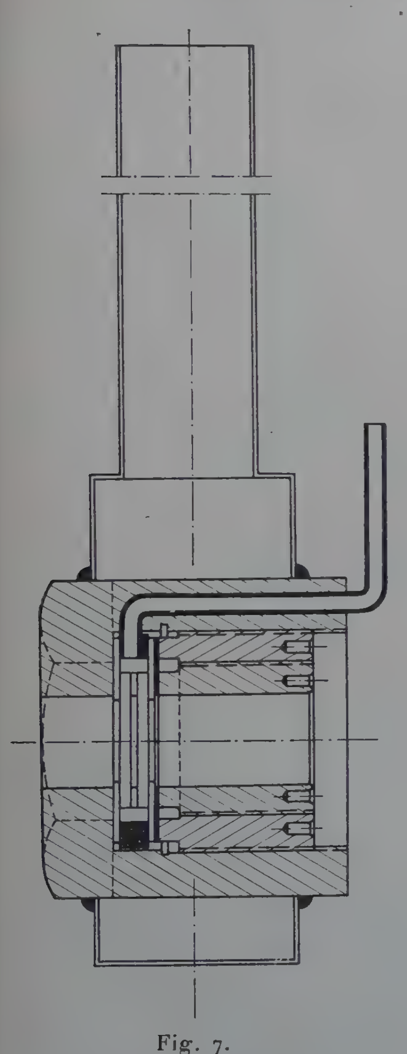


Fig. 7.

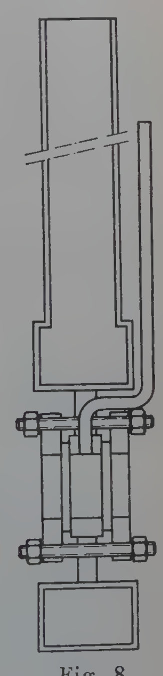


Fig. 8.

D. — Manomètre.

L'acide fluorhydrique n'agissant sur le mercure, d'après (7), que vers 1 000° C, nous avions d'abord choisi pour la mesure des pressions un manomètre à mercure à variation de résistance électrique. Il

était constitué d'un tube en platine de 1 mm. de diamètre intérieur, de 1/10 mm. d'épaisseur et de 2 m. de longueur. Ce tube était branché sur un autre tube en verre. Le niveau du mercure dans le tube en platine était déterminé par la variation de la résistance du tube en fonction du niveau du mercure. La méthode était précise et par un étalonnage préalable avec des pressions connues, on lisait facilement la pression à 1 mm. près.

La manipulation de ce manomètre était très délicate. En effet, pour donner au tube en platine une résistance mesurable, nous étions obligés de le prendre aussi fin et aussi mince que possible (1 mm. de diamètre intérieur, 1/10 mm. d'épaisseur), ce qui rendait le tube très fragile et difficile à manier. Pour faciliter l'opération, nous avons remplacé le tube mince en platine par un tube de 6 mm. de diamètre intérieur en acier inoxydable. Le niveau du mercure se lisait directement sur la deuxième branche du manomètre qui était en verre, par étalonnage préalable.

Le mercure utilisé dans le manomètre était filtré, lavé à l'acide sulfurique concentré, à l'acide azotique dilué, à l'eau distillée, et enfin il était distillé sous vide (18) (19).

E. — Robinets.

La question qui se posait était la suivante : avoir un robinet en argent, en platine ou en acier inoxydable étanche au vide sans emploi de graisse.

1) *Robinet à membrane d'argent.* — Naturellement la première idée qui venait à l'esprit était de réaliser un robinet à pointeau, fait avec l'un de ces métaux et ayant une membrane en argent. Il était souhaitable d'avoir des robinets entièrement en platine, mais à cause de son prix élevé, ce métal a été toujours remplacé par d'autres moins coûteux, sauf dans les cas exceptionnels où son emploi a été jugé indispensable. C'est pour ces raisons que nous avions choisi au début de ce travail des robinets en argent (corps et membrane) pensant que ce métal est une excellente substance pour l'étude de l'acide fluorhydrique. Le pointeau de ces robinets qui demandait plus de résistance avait été fait en platine iridié.

Comme on le voit sur la figure (9), nos robinets sont essentiellement composés d'une membrane et d'un corps en argent. Le corps est un cylindre dans lequel peut glisser une tige terminée par un cône en platine iridié et soigneusement rodé. Le système est fixé sur un support en laiton, au moyen d'une vis on peut monter ou descendre la tige sans la faire tourner.

Dans le mode de construction initiale que nous n'avons pas eu la possibilité de modifier, malgré leur apparence simple, ces robinets

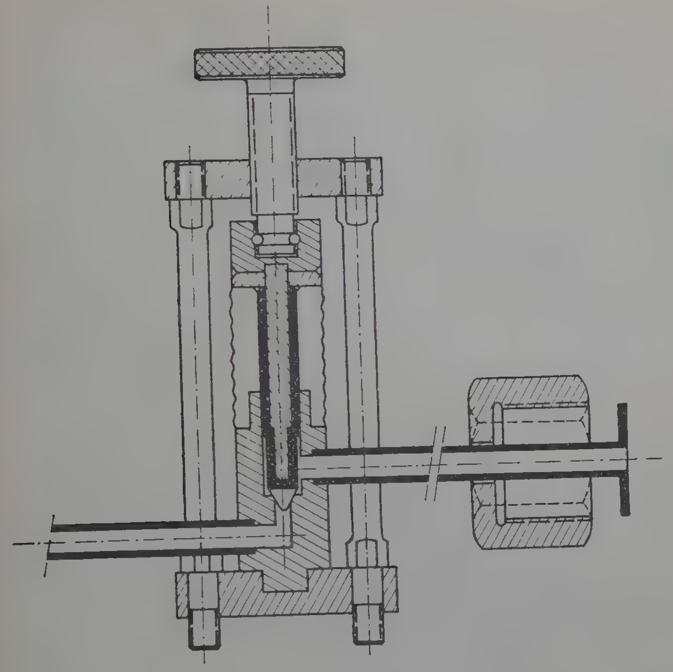


Fig. 9.

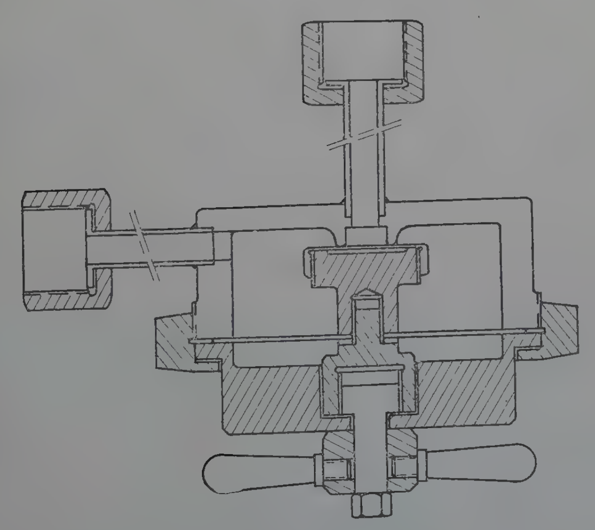


Fig. 10.

étaient très délicats, leur fabrication demandant beaucoup de précision et leur manipulation beaucoup de précautions.

2) *Robinets à membrane de téflon.* — A cause des difficultés citées plus haut nous avons voulu réaliser des robinets plus pratiques. Un de ceux-ci est le robinet à membrane de téflon, analogue à un robinet à vide classique. La figure 10 montre le schéma de ce robinet que nous avons fait construire en acier inoxydable. Il est constitué de deux corps métalliques vissés l'un dans l'autre et séparés par une rondelle en téflon serrée solidement entre eux et assurant l'étanchéité.

La course dans les robinets dont nous disposions était de l'ordre de 1,5 mm, ce qui était largement suffisant pour la circulation du gaz, vu le diamètre des orifices d'arrivée et de sortie du gaz (6 mm.).

F. — Dispositif optique.

a) Source. — Dans l'ultra-violet moyen et dans la région de Schumann, nous avons employé comme source le tube à hydrogène de Chalonge et Lambrey (19, p. 263) et (20).

La décharge a été alimentée par un transformateur de 2 000 V, 400 W ; une self branchée en série avec le primaire du transformateur améliorait la stabilité de la lampe.

b) Lentilles. — Dans les expériences faites dans l'air, nous avons employé comme optique deux ou trois lentilles suivant le cas, en quartz centrées sur l'axe de la source et donnant un faisceau parallèle ou convergent. En effet, tant que la cuve n'est remplie qu'avec du gaz ou tant que l'épaisseur du liquide contenu dans la cuve n'est pas forte, l'erreur introduite par un non-parallélisme du faisceau est négligeable. L'étalonnage des longueurs d'onde était fait par les raies d'une étincelle entre électrodes de cuivre.

c) Spectrographe. — Dans la région de l'ultra-violet moyen, nous disposions d'un spectrographe Hilger à prisme de quartz petit format.

Dans nos expériences, l'image de la source recouvrait complètement la fente du spectrographe, mais on n'utilisait que la partie centrale de l'image, en recouvrant les bords par un écran métallique. Le temps de pose variait de 5 secondes à 2 minutes. Il était mesuré par un chronomètre marquant le 1/10 de seconde. Les spectres pris étaient encadrés par les raies du cuivre. L'ouverture de la fente variait de 1/10 à 1/20 de millimètre.

Pour certaines expériences, nous avons disposé d'un spectrographe Hilger, type moyen. Cet appareil ayant plus de dispersion avait naturellement un prisme plus grand, ce qui rapprochait sa limite de

transparence. Avec un bon réglage nous sommes arrivés à descendre jusqu'à 2 000 Å.

L'appareil employé pour l'ultra-violet lointain a été monté dans notre laboratoire par J. Romand (21). C'est avec cet appareil que nous avons effectué nos expériences dans la région de Schumann. C'est un spectrographe à vide à réseau concave de 1 m. de rayon de courbure, aluminium sur verre, utilisé en incidence normale, avec une dispersion de 18 Å/cm.

d) Surfaces sensibles. — Les plaques employées étaient en général ou des plaques superfulgur (Guilleminot) ou des plaques Ilford, dites plaques Q. 1. Ces dernières sont quatre fois moins sensibles que les superfulgur sensibilisées. La sensibilisation de ces dernières était faite par une solution à 2 o/o de salicylate dans l'alcool méthylique.

e) Réducteurs d'intensité. — Les réducteurs d'intensité que nous avons utilisés pour l'étalonnage des spectres sont les réducteurs utilisés par Tréhin (22), ce sont des toiles en laiton oxydé à la flamme ; leur densité qui est pratiquement la même sur toute la surface avait pour les différentes grilles les valeurs : 0,16 ; 0,38 ; 0,54 ; 0,78 et 1. Ces densités ont été à nouveau déterminées récemment.

Les grilles sont mises perpendiculairement sur le trajet de la lumière, contre la lentille projetant l'image de la source sur la fente du spectrographe. On prend toujours les précautions nécessaires pour que les phénomènes de diffraction soient négligeables. Dans nos expériences, la densité optique étant toujours inférieure à 1, nous avons pu nous contenter de ces grilles.

f) Photométrie photographique. — Les densités optiques ont été mesurées par la photométrie photographique, dont Tréhin a donné une bibliographie détaillée (22, p. 466).

G. — Les impuretés.

On sait qu'au-dessous de certaines longueurs d'onde, l'absorption des traces d'impuretés est très gênante. Or c'est précisément dans la région des courtes longueurs d'onde que nous avons fait nos mesures ; c'est pourquoi, comme nous l'avons signalé au chapitre premier, nous avons pris les mesures nécessaires pour éviter l'intervention des traces de corps étrangers.

a) Impuretés dues a la préparation. — Au premier chapitre, nous avons expliqué les méthodes employées pour la purification de l'acide et la suppression de toutes sortes d'impuretés. Après toutes ces précautions les traces d'impuretés dont on pouvait présumer l'existence

étaient les traces des composés fluorés du cuivre, de l'argent et de la vapeur d'eau. Les traces d'humidité, malgré les précautions prises, nous paraissaient les plus vraisemblables. En effet, les canalisations métalliques, l'impossibilité d'employer des agents déshydratants et surtout le caractère hygroscopique de l'acide fluorhydrique rendait extrêmement difficile l'élimination de l'humidité. Dans les précédents chapitres, nous avons expliqué les différentes manières par lesquelles nous avons pu réduire au minimum l'existence de traces d'eau (cristallisation et desséchage du sel, suppression de l'humidité adsorbée par les parois intérieures de l'appareil par chauffage sous vide, pompages successifs avant le remplissage de la cuve).

Après ces opérations nous avons remarqué que la tension de vapeur lue sur le manomètre concordait parfaitement avec celle de la littérature (3, p. 2182).

Les impuretés citées plus haut sont toutes dues à la préparation. L'expérience nous a montré que malgré la grande activité chimique de l'acide fluorhydrique sur la plupart des substances, une préparation soignée conduit toujours à des résultats satisfaisants.

A part l'acide préparé par nous-mêmes, nous avions à notre disposition une bouteille de six livres d'acide fluorhydrique fabriqué par « The Harshaw Chemical Co ». L'expérience spectrographique nous a montré que cet acide contenait une impureté qui le rendait inutilisable pour l'étude de l'absorption optique. En effet, en comparant les spectres pris avec de l'acide fluorhydrique préparé par nous et l'acide Harshaw, on remarque que ce dernier absorbe à la région de courtes longueurs d'onde. Cette absorption continue n'est pas due à l'anhydride sulfureux (puisqu'on connaît les bandes d'absorption de l'anhydride sulfureux) ; elle est peut-être due à l'acide fluosulfonique ou fluosilicique. Signalons de même que la tension de vapeur de cette impureté est très voisine de celle de l'acide fluorhydrique. En effet, nous n'avons pas pu arriver à l'éliminer par le pompage. Cette impureté n'existait pas dans l'acide préparé au laboratoire. C'est pourquoi toutes les mesures ont été faites avec de l'acide préparé par nous-mêmes et l'acide Harshaw a été complètement abandonné.

b) Impuretés dues aux parois. — Lorsque nous avons employé des canalisations et des cuves en argent ou en cuivre, nous avons remarqué l'apparition des bandes d'absorption du gaz sulfureux, signalées par Kohei-Siga et Plumley (24, 25). Une série de pompage dans le réservoir, faisait disparaître la série la plus faible, mais l'autre série qui était plus forte n'a été éliminée que par le remplacement des dispositifs en argent par des appareils en acier inoxydable.

En résumé, à la pression atmosphérique et sous une épaisseur de 227 cm., aucune absorption n'a été observée dans l'ultra-violet moyen.

H. — Exposé des résultats.

a) Bande d'absorption du gaz fluorhydrique dans l'ultra-violet lointain. — Ainsi que nous l'avons signalé plus haut, l'acide fluorhydrique gazeux n'a été étudié jusqu'à présent que par Kohei-Siga et Plumley (24, 25) dans l'ultra-violet proche, et l'étude dans l'ultra-violet lointain n'a été abordée par aucun expérimentateur.

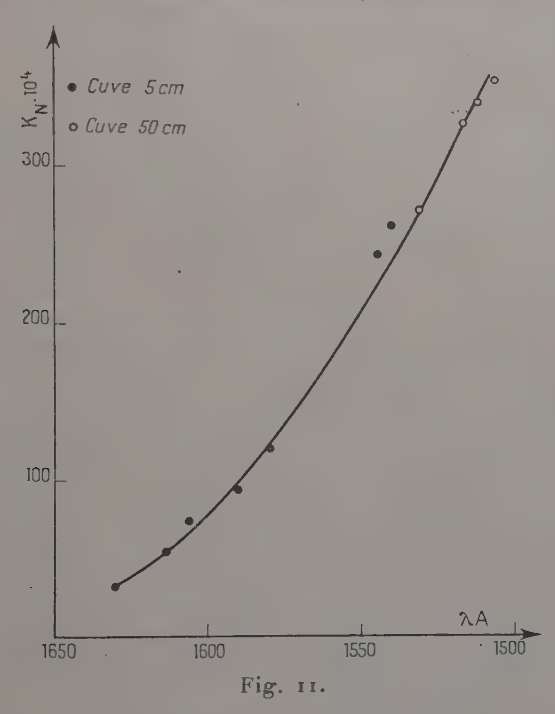


Fig. 11.

C'est pourquoi lorsque nous avons mis en évidence la transparence du gaz dans tout l'ultra-violet moyen, nous avons poussé nos expériences jusqu'à la région de Schumann.

Comme il a été dit plus haut, dans cette région l'analyse a été faite avec un spectrographe à réseau concave et lentilles de fluorine permettant d'étudier l'absorption jusqu'à 1 350 Å, mais à cause de l'absorption de nos fenêtres en corindon, nous étions limités à 1 520 Å environ.

Les mesures ont été faites par spectrophotométrie photographique; les cuves utilisées étaient de 5,50 et 500 mm. de longueur. Il aurait été souhaitable d'avoir des cuves plus longues, mais avec l'appareil

tel qu'il était, on n'aurait pas pu s'en servir. Nous avons décelé une bande d'absorption continue située dans le domaine des courtes longueurs d'onde ; elle débute à 1 650 Å environ. La figure 11 représente le coefficient d'absorption normal K_N en fonction du nombre d'onde, on sait qu'on a :

$$K_N = \frac{1}{x} \log \frac{I_0}{I} (1 + \alpha t) \frac{760}{H} \text{ où } x \text{ est exprimé en centimètres.}$$

La concordance des résultats obtenus avec les deux cuves de 5 et de 50 cm., compte tenu de la mauvaise précision due à la petitesse des densités optiques mesurées (toujours inférieures à 0,25 et souvent à 0,1) montre que cette bande ne présente pas de structure discontinue, non résolue par le spectrographe (27). Nous n'en possédons qu'une très petite partie ($2,7 . 10^{-3} < K_N < 3,5 . 10^{-3}$) et la longueur d'onde du maximum est certainement beaucoup plus courte. Des purifications répétées n'ayant pas amené de modifications dans son aspect, nous concluons que cette absorption appartient au spectre de l'acide fluorhydrique.

b) Comparaison des spectres d'absorption des hydracides analogues. — Si on trace tout à fait empiriquement la courbe du nombre d'ondes du maximum d'absorption en fonction de la masse moléculaire pour HCl, HBr et HI, on trouve une droite (la précision atteint 0,5 o/o). Cette façon d'agir n'est guère légitime, car on sait que pour l'acide iodhydrique deux transitions interviennent et on prend le maximum de la courbe totale. Néanmoins cette droite donne pour l'acide fluorhydrique supposé à l'état monomoléculaire FH, pour le maximum d'absorption, le nombre d'ondes $\nu = 68\,400$ cm^{-1} c'est-à-dire $\lambda = 1\,460$ Å. La même opération effectuée sur les maxima donne une courbe très tendue et la valeur du coefficient d'extinction normal ainsi extrapolée pour le gaz fluorhydrique dissocié est de l'ordre de 46,4 (40 pour HCl, 23,5 pour HBr et 7.8 pour HI). Or d'après les mesures faites, ce coefficient n'est que de 0,05 à 1 500 Å (à la température de 16°5 C), c'est-à-dire à une distance de 40 Å du maximum interpolé. Cette différence est incomparablement plus faible pour les autres hydracides ; à quelques milliers de cm^{-1} du maximum le coefficient aurait été divisé par 2 (par exemple pour ClH il passe de 40 à 22,4) pour un déplacement de 5 000 cm^{-1} à partir du maximum. Pour l'explication de cette anomalie deux idées viennent à l'esprit :

1) La faible absorption observée pour le gaz fluorhydrique est due au fait qu'à la température ordinaire (conformément aux travaux faits sur la densité de vapeur (27)), l'acide est à l'état presque totalement associé et que par conséquent il y a très peu de molécules $(FH)^1$ existant à cette température.

2) La molécule de l'acide fluorhydrique est différente de celles des

autres hydracides et les transitions qui sont à l'origine de son spectre ne sont pas de même nature que celles concernant HCl, HBr et HI, c'est-à-dire que le maximum d'absorption est nettement plus loin dans l'ultra-violet et plus faible que les valeurs extrapolées (malheureusement à cause de la limitation de transparence de nos fenêtres (1 500 Å environ) nous n'avons pas pu déceler le maximum de l'absorption). Ainsi que nous l'avons décrit antérieurement, l'attaque énergique du gaz fluorhydrique sur la fluorine et le fluorure de lithium qui sont d'un usage courant dans l'étude de l'absorption des courtes longueurs d'onde nous a empêché d'utiliser ces corps comme fenêtres.

En reprenant la première hypothèse, on peut prévoir que l'absorption doit augmenter en fonction de la température et elle doit atteindre une valeur limite quand les molécules de l'acide sont complètement dissociées sous l'effet de la chaleur.

En effet, d'après les travaux de Simons et Hildebrand (27), l'acide fluorhydrique est complètement dissocié vers 100°, sous une pression voisine de la pression atmosphérique (745 mm. Hg). Or nous dirons au chapitre suivant comment cette hypothèse est confirmée en partie, tandis que d'autres anomalies sont apparues.

c) Effet de la température sur l'absorption du gaz fluorhydrique. — Nous avons déjà dit que la cuve destinée à l'étude de « l'effet de la température sur l'absorption de l'acide fluorhydrique » était faite d'un seul bloc en acier inoxydable. Elle était soigneusement nettoyée et étuvée à 400° sous vide. Toutes les jonctions étaient faites par des filetages et de cette manière le brasage était complètement évité et l'acide n'était en contact qu'avec l'acier inoxydable, le corindon et le téflon. Notons enfin que le téflon à son tour avait été parfaitement nettoyé et lavé plusieurs fois dans l'acide fluorhydrique commercial et étuvé à 200° sous vide. Les précautions ainsi prises nous ont assuré la pureté du gaz à étudier. De plus, nous n'avions jamais négligé les pompages successifs du gaz avant la prise de spectre. Dans cette expérience toutes les parties de l'appareil (cuve, canalisations, robinets) avaient été faites en acier inoxydable.

Nous avons d'abord constaté qu'avec ce dispositif, le système de bandes de Kohei-Siga et Plumley disparaît et, comme dans nos conditions expérimentales, il n'y a pas d'autres bandes jusqu'à 1 650 Å, les essais sur l'effet de température ont été faits dans la région de Schumann. A cause de la faible longueur de la cuve imposée par le montage, nous avions toujours utilisé la pression maximum (environ 460 Torr), car l'absorption est peu intense. Avant d'exposer les résultats obtenus, nous jugeons utile de donner un aperçu rapide des mesures prises pour s'assurer de la pureté du gaz.

Le vide étant fait au moyen d'un piège à charbon et par l'intermé-

diaire d'une canalisation de 6 mm. la cuve, même chauffée à 165°, restait transparente. D'autre part, nous avons rempli la cuve avec de l'acide (température de la cuve 115°), nous avons pris un spectre, ensuite nous avons laissé tout en état pendant 15 minutes, et avons refait un autre spectre avec le même acide. Le spectre est absolument inchangé (pression 500 Torr). Dans la même experience, nous avons rempli la cuve (à 115° C) avec de l'acide fluorhydrique, et avons

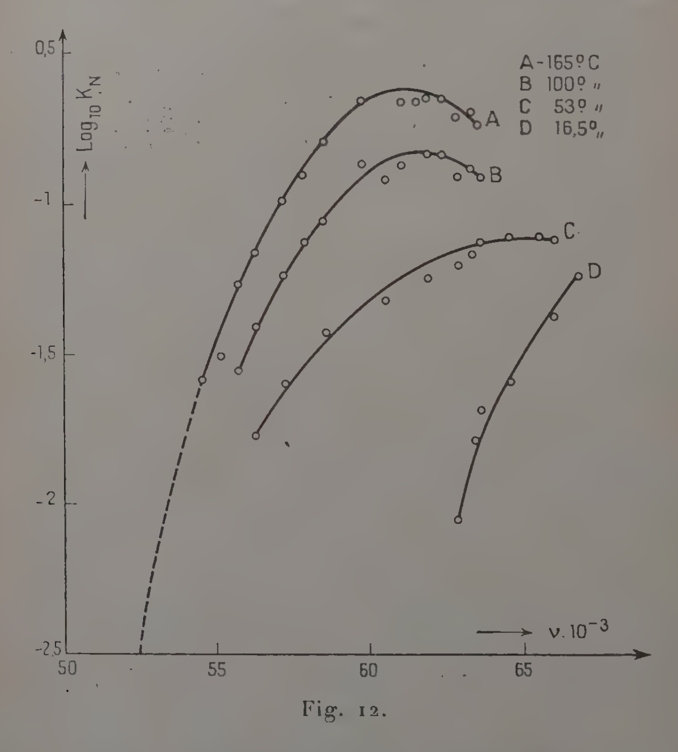


Fig. 12.

chauffé à 165° et laissé refroidir à 115°, les deux spectres pris à 115° C (avant et après le chauffage de l'acide à 165°) sont identiques. Bref, sur une série d'une dizaine de plaques, les différences des spectres, pris dans les mêmes conditions, sont extrêmement faibles, c'est-à-dire à la précision de l'expérience la reproductibilité est très bonne.

La figure 12 représente les courbes d'absorption du gaz fluorhydrique porté à 16°5, 53°, 100° et 165° C. Sur les courbes on a porté en abscisses le nombre d'ondes et en ordonnées le logarithme du coefficient d'extinction moléculaire :

$$\varepsilon = \frac{d}{l} 22{,}4 \cdot \frac{M}{M_1}$$

d étant la densité optique, *l*, la longueur de tranche absorbante (5,80 cm.), M, la masse moléculaire normale ($\neq$ 20) et M_1, la masse moléculaire apparente dans les conditions de l'expérience. Cette dernière s'obtient pour 16°5 C et 35° C à partir des mesures de densité (27) et (28) et pour 100° C et 165° C par application des formules classiques de dilatation et compression qui constituent une approximation suffisante dans ce cas. On voit que l'absorption croît avec la température d'abord rapidement (de 16°5 C à 35° C) et ensuite plus lentement. Les courbes C et D présentent un maximum pour $\nu = 62\,000$ cm^{-1} environ ($\lambda = 1\,612$ Å).

DEUXIÈME PARTIE

ESSAIS SUR LE SPECTRE RAMAN DE L'ACIDE FLUORHYDRIQUE LIQUÉFIÉ

Etant donné que les études faites jusqu'ici n'ont donné aucun résultat positif sur le spectre Raman de l'acide fluorhydrique, nous avons voulu utiliser nos techniques pour essayer de déterminer ce spectre.

A. — Dispositif expérimental.

a) Optique. — Nous disposions d'un spectrographe « Cojan » à deux prismes de flint (hauteur 8 cm.) ouvert à *f*/5 dont la dispersion était de 20 Å/mm. à 4 358 Å et de 45 Å/mm. à 5 350 Å. Un condenseur ouvert à *f*/1 formait l'image de la source au centre de la cuve.

b) Source. — La source de lumière était un arc au mercure « Gallois » modèle moyen « en bout », fonctionnant en courant continu et consommant 300 W sous 75 V.

Nous avons pensé utile d'exciter la substance avec la raie de résonance du mercure (2 537 Å). En effet, comme il sera dit prochainement, dans les expériences faites nous avons toujours remarqué la présence d'une fluorescence assez gênante dans la région visible. Or en acceptant la valeur de la fréquence propre du gaz (déterminée par l'étude du spectre infra-rouge : 4 142 cm^{-1}) valable pour le liquide, la raie, ou le centre de la bande Raman, ainsi calculée devrait se trouver vers 5 315 Å, 4 856 Å ou 4 300 Å, suivant qu'on excitait avec 4 358 Å, 4 047 Å ou 3 650 Å. On remarque que la raie ou la bande

Raman obtenues par les raies d'excitation usuelles seront toutes situées dans la région visible partiellement recouverte par la fluorescence. Mais la technique d'excitation par la raie de résonance posant des problèmes assez difficiles, nous nous sommes contentés d'exciter avec les raies citées plus haut, en comparant les résultats obtenus par différentes raies excitatrices.

c) Filtres. — Nous avons utilisé simultanément : le filtre à base de sulfite de sodium (29) ou le filtre de Sannié (30) pour la raie 4 358 Å ; et celui à base d'iode (29) pour la raie 4 047 Å.

Dans le cas où l'arc n'était pas poussé à son régime normal, on diminuait la concentration des solutions pour économiser le temps de pose.

Le filtre pour la raie 3 650 Å était une plaque de verre de Wood, de 2,5 mm. d'épaisseur. Le maximum de transmission de ce verre se trouve à 3 650 Å (plus de 70 o/o). Il est pratiquement opaque entre 4 000 Å et 6 500 Å (résultat des mesures faites par Gallois).

La transparence du condenseur, ainsi que celle du verre de Wood utilisé pour la raie 3 650 Å a été mesurée à l'aide d'une cellule photoélectrique. Elle est de 0,476 pour le condenseur et 0,38 pour le verre de Wood.

d) Cuve. — En raison de l'attaque de l'acide fluorhydrique sur le verre et le quartz, nous avons été obligés de réaliser une cuve métallique spéciale, dont la forme diffère de la forme classique (fig. 13).

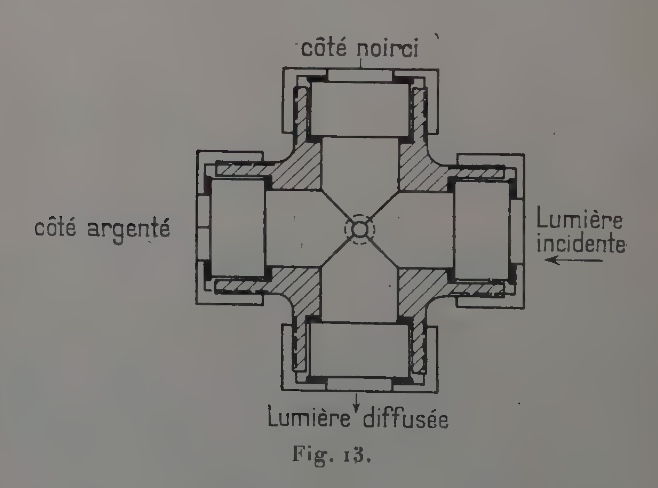


Fig. 13.

e) Plaques. — Suivant la raie excitatrice choisie et la région d'où l'on soupçonnait l'existence d'un effet Raman, nous avons utilisé des

plaques superfulgur Guilleminot, spéciales pour l'effet Raman, pour les raies excitatrices 3 650 Å et 4 047 Å ; et des plaques panchromatiques Gevaert ou altichrome Lumière pour la raie 4 358 Å. Cette dernière a une sensibilité maximum dans le vert.

f) Repérage des longueurs d'onde. — Le spectrographe a été étalonné au moyen de l'arc au fer.

g) Réglage. — Le réglage du montage a été fait par le procédé de retour inverse.

h) Préparation et pureté du gaz. — Toutes nos expériences ont été faites par l'acide préparé au laboratoire par les procédés décrits au début de ce mémoire.

B. — **Résultats expérimentaux.**

Nos résultats confirment les données antérieures (31, 32).

Sur tous nos spectres nous observons une bande continue, intense et large entre le bleu et le vert. Cette bande est due à la fluorescence, car son emplacement ne dépend pas de la radiation excitatrice (4 358 Å, 4 047 Å, 3 650 Å) ; elle semble être la plus forte avec 4 047 Å. Son maximum est vers 4 700 Å. Il est difficile de savoir à quoi il faut attribuer cette fluorescence. Il est certain que nos expériences ont été faites dans des conditions nettement différentes de celles de Woodword et Tyrrell (32) (acide anhydre à environ 50 mol./litre, au lieu des solutions aqueuses à 40 o/o, soit 23 mol./litre environ, absence totale de paraffine ou d'huile) ; pourtant nous retrouvons la même bande ; dans nos expériences la paraffine ne peut être incriminée ; par contre, nous avons vérifié que le téflon est légèrement fluorescent, mais il est très improbable qu'il réagisse avec l'acide. Notre acide a été préparé dans les mêmes conditions que pour les essais faits dans l'ultra-violet, où il s'est montré très transparent. Il est donc probable qu'il était bien pur. Cependant, on sait que des traces d'une substance suffisent à provoquer la fluorescence et comme nous n'avons pas cherché jusqu'ici à faire des purifications successives et suivre en même temps l'intensité de la fluorescence, nous ne pouvons pas affirmer avec certitude que la bande de fluorescence observée est due à l'acide fluorhydrique même, mais cela est assez probable. On a signalé également la fluorescence de HBr ; toutefois pour l'acide chlorhydrique liquide et anhydre à son point d'ébullition normal, malgré une excitation très intense, Vodar n'a pas observé de fluorescence notable (33).

En dehors de la bande de fluorescence, comme les auteurs précédents, nous ne trouvons pas de fréquences Raman bien caractérisées.

Cependant avec l'excitation par la raie 3 650 Å, il nous était possible d'observer commodément les fréquences comprises entre 3 910 Å et 4 400 Å (soit 2 850 cm^{-1}) qui sont en dehors de la région de fluorescence. En outre, avec l'excitation par 4 358 Å, les fortes fréquences de 5 500 Å (soit 4 760 cm^{-1}) étaient également accessibles. Toutefois, avec excitation par 3 650 Å sur l'enregistrement du spectre le moins posé (72 heures), où le fond de fluorescence est relativement faible, on distingue un palier très net (fig. 14) à 4 380 Å environ (soit 4 560 cm^{-1}). Mais le spectre le plus posé (140 heures) ne permet pas

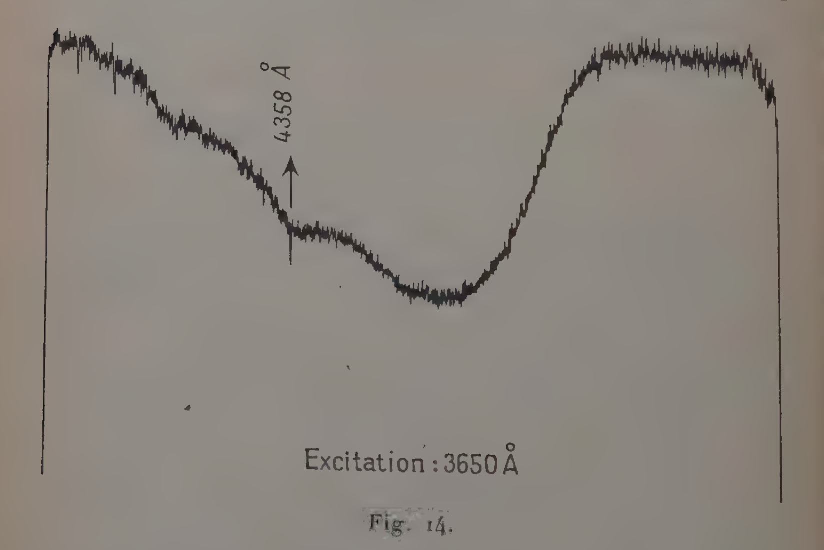
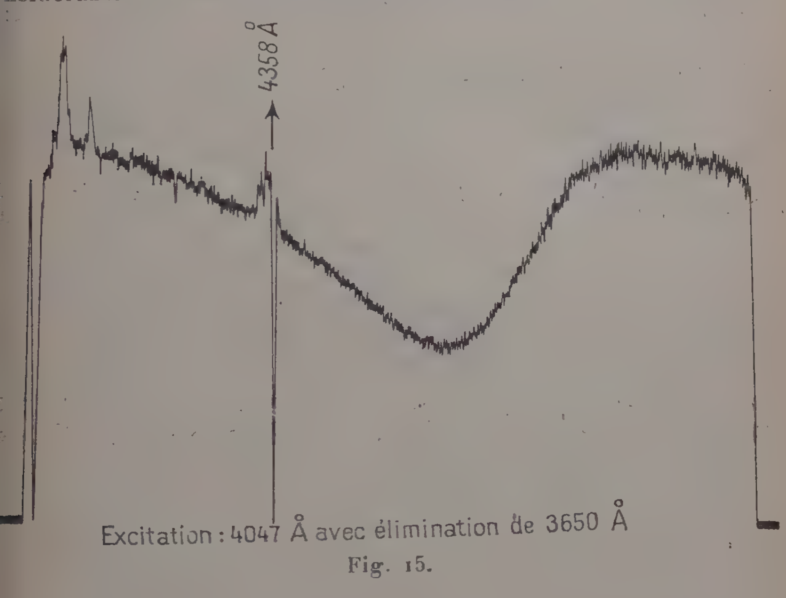


Fig. 14.

de déceler ce palier ; il est possible que dans ce cas, la faible bande à 4 560 cm^{-1} soit invisible à cause du fond de fluorescence qui est très intense ; dans cette hypothèse, ce palier doit être attribué à une fréquence Raman, car il n'existe sur aucun des autres enregistrements du fond continu excité par 4 358 Å ou 4 047 Å (la figure 15 représente l'enregistrement du spectre excité par la raie 4 047 Å, dans lequel la radiation 3 650 Å est éliminée par l'utilisation du filtre à l'aldéhyde salicylique). Enfin, nous avons observé également une bande large dans la région verte avec les spectres excités par 4 358 Å et pris sur plaques panchromatiques. Comme des plaques de ce type n'avaient pas été utilisées pour d'autres excitations, il est difficile de dire l'origine de cette bande qui est très nette. Elle peut être attribuée à une seconde région de fluorescence ou à une région moins sensible de la plaque.

En résumé, les résultats ci-dessus ne permettent pas une conclu-on sûre mais laissent supposer l'existence d'une bande Raman très rge. La grande largeur de cette bande serait à opposer à celle beau-up plus faible de ClH liquide et à rapprocher des largeurs très nsidérables de certaines bandes de l'eau.



Excitation : 4047 Å avec élimination de 3650 Å

Fig. 15.

TROISIÈME PARTIE

ABSORPTION DE L'ACIDE FLUORHYDRIQUE DANS L'INFRA-ROUGE

L'étude du spectre Raman de l'acide fluorhydrique liquéfié nous a conduit à effectuer quelques essais sur l'absorption du gaz fluorhydrique liquéfié dans l'infra-rouge. En effet, l'effet Raman n'a pas donné un résultat permettant de déduire une structure moléculaire précise, ainsi qu'une fréquence déterminée des molécules à l'état liquide.

A. — Dispositif expérimental.

Le spectromètre utilisé était un appareil enregistreur Perkin-Elmer, modèle 12 C.

B. — Résultats expérimentaux.

L'étude de l'absorption de l'acide fluorhydrique gazeux ou liquide a été faite entre 13 400 cm^{-1} (0,74 μ) et 2 200 cm^{-1} (4,54 μ).

a) Acide gazeux. — Nous avons d'abord enregistré l'absorption de l'acide gazeux sous la pression atmosphérique ; on sait que cette étude avait été faite par plusieurs auteurs : Imes (34), Scheafer et Thomas (35), Salant et Kirkpatrick (36), Buswell et ses collaborateurs (37), etc.

1° *Bande non perturbée :* nos résultats confirment ces travaux. La figure 16 montre les variations du coefficient d'extinction de l'acide gazeux à 20° et à la pression atmosphérique. Sur cette courbe, en raison de la faiblesse des épaisseurs employées (33,7 et 1 mm.), les valeurs calculées pour le coefficient d'extinction ne sont qu'approximatives. En effet, sur l'appareil tel qu'il est, on ne peut monter que des cuves ayant une longueur maximum de 12 cm. Notons toutefois que les expérimentateurs déjà cités ne signalent rien sur la valeur absolue du coefficient d'extinction.

Le tableau ci-dessous montre l'accord satisfaisant entre nos résultats sur la résolution de la bande fondamentale et ceux trouvés par Buswell et ses collaborateurs (37).

ν(cm^{-1}).

D'après Buswell .	3 787	3 834	3 879	3 921	4 003	4 040	4 076	4 110	4 144	4 173
D'après nos mesures .	3 770	3 829	3 877	3 9 9	4 010	4 048	4 084	4 115	4 144	4 168

Nos mesures ont été faites avec la vitesse 4 de l'appareil pour laquelle la dispersion est d'environ 4 cm^{-1}/mm. sur l'enregistrement dans la région étudiée.

2° *Bande d'association :* nous avons de même retrouvé les bandes dont les sommets se trouvent à 2,95 μ et 2,87 μ et qui sont attribuées aux molecules associées.

Dans nos mesures la première qui se manifeste vers 2.96 μ est composée de deux maxima et la deuxième montre une structure vers 2,8 μ (fig. 16).

b) Acide liquéfié. — Pour l'acide liquéfié, nous avons fait quatre mesures sous 33,7 mm., 1 mm., 1/10 mm. et 3/100 mm. d'épaisseur.

L'acide, sous l'épaisseur de 33,7 mm., était opaque à partir de 10 600 cm^{-1} (0,943 μ), ce qui rendait toutes les mesures impossibles. La cuve de 1 mm. d'épaisseur nous a révélé l'apparition d'une bande forte vers 9 950 cm^{-1}, soit 1,005 μ et un palier à 5 220 cm^{-1}, soit 1,915 μ.

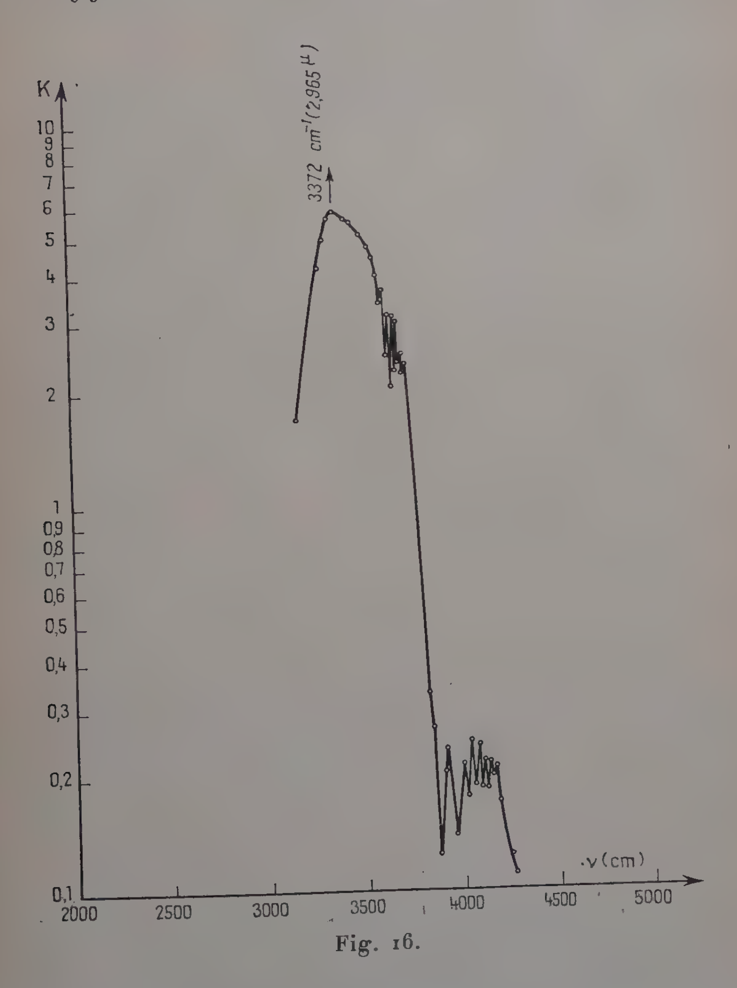


Fig. 16.

Sous 1/10 de millimètre d'épaisseur, nous avons remarqué une autre bande forte vers 4 152 cm^{-1}, soit 2,408 μ, qui montrait une structure semblable à celle de l'acide à l'état gazeux non associé. Enfin, c'est avec une épaisseur de 3/100 de millimètre que nous avons pu trouver la bande fondamentale dont le centre se trouve vers 3 070 cm^{-1}, soit 3,257 μ. Nous avons poussé l'étude jusqu'à la limite de nos possibili-

tés (2 200 cm^{-1}), mais aucune autre bande ni aucun palier n'ont été trouvés. La figure 17 représente l'absorption de l'acide liquéfié dans toute la région étudiée.

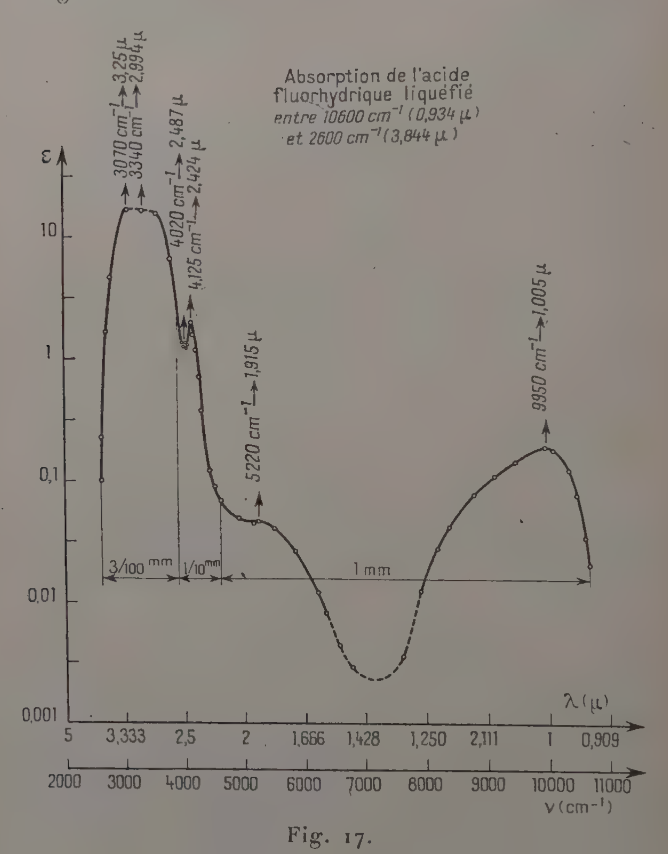


Fig. 17.

QUATRIÈME PARTIE

ESSAI D'INTERPRÉTATION THÉORIQUE

A. — Absorption ultra-violette.

a) Courbes d'énergie potentielle. — La courbe d'énergie potentielle de l'état de base a été tracée d'après la formule de Morse (33) (fig. 18). Les valeurs des constantes vibrationnelles (la fréquence de

vibration ω_e et le facteur d'anharmonicité x_e) sont les valeurs trouvées par Kirkpatrick et Salant (38). Elles ont pour valeur : $\omega_e = 4\,132$ et $x_e\omega_e = 85$ cm^{-1}. Notons que les valeurs calculées pour ces constantes sont différentes d'un auteur à l'autre ; les premières valeurs données par Jevons (39) sont : $\omega_e = 4\,037$ et $x_e\omega_e = 50$ cm^{-1} ; la valeur $x_e\omega_e$ est

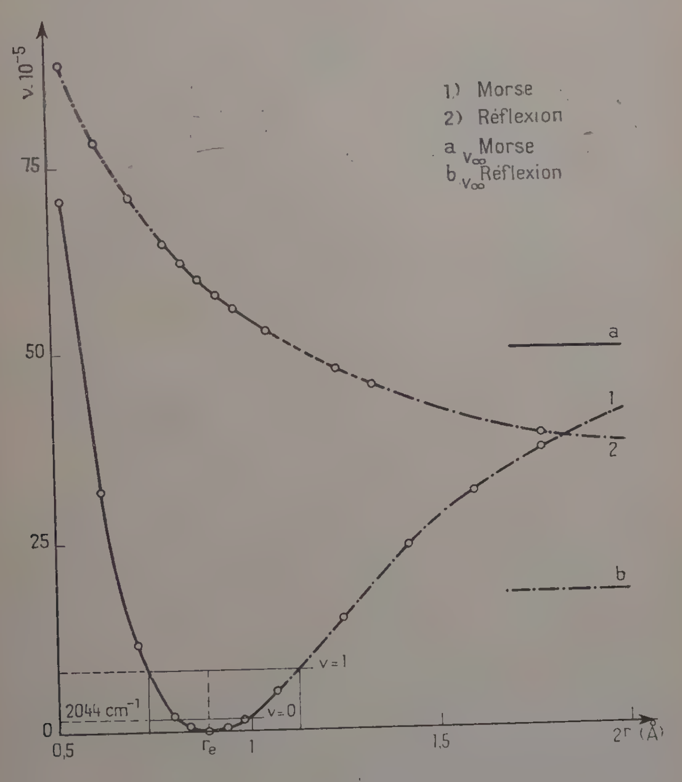


Fig. 18.

à abandonner. En effet elle donne pour l'énergie de dissociation le nombre de 79 480,8 cm^{-1} soit 9,85 ev, quantité qui est beaucoup trop grande par rapport au nombre 6,1 ev trouvé par Gaydon (40) qui est voisin de celui calculé par nous-mêmes (6,07 ev soit 50 216 cm^{-1}). Nous y reviendrons prochainement.

Ces valeurs donnent pour la courbe d'énergie potentielle de l'état de base la formule :

$$v'' = 50\,216[1 - e^{-2,202(r - 0,89)}].$$

Dans cette formule, pour la distance d'équilibre r_e, nous avons choisi la valeur la plus récente, c'est-à-dire 0,89 Å (41, p. 56). Sur la même figure (18) nous avons aussi tracé la courbe d'énergie potentielle de l'état excité, d'après la formule du type Kratzer par la méthode de la réflexion. Cette courbe a pour équation :

$$v' = 17\,506 + \frac{38\,184,5}{r - (0,89 - 331\,404/364\,875)^2} \cdot$$

Notons bien que les parties pointillées n'ont aucune réalité physique ; elles sont simplement la représentation géométrique des formules de l'énergie potentielle de l'état de base et de l'état excité.

b) Courbe d'absorption de l'acide fluorhydrique gazeux. — La figure 19 représente la courbe expérimentale de l'absorption du gaz fluorhydrique à 165°. Nous avons appliqué à cette courbe la méthode

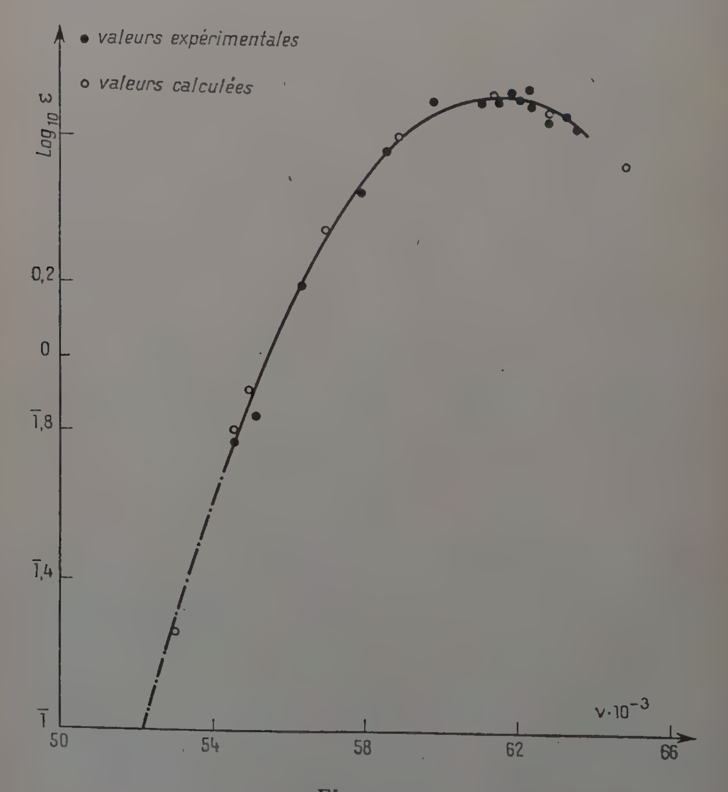


Fig. 19.

de la réflexion (21, p. 49) qui nous a donné les points marqués d'un cercle. La courbe théorique a pour formule :

$$\log \frac{k_N}{\nu} = 1\,687{,}27 - 306 \log(\nu - 15\,461) - \frac{57\,029{,}04}{\sqrt{\nu - 15\,461}}.$$

L'accord satisfaisant entre la courbe théorique et expérimentale nous incite à penser qu'à 165° le nombre de molécules qui se trouvent au niveau $v = 1$ est très faible, en effet on sait que les calculs précédents s'appliquent uniquement pour les transitions à partir du niveau $v = 0$ [1].

Le tableau I montre les valeurs calculées et mesurées de $\log \frac{\varepsilon}{\nu}$ pour certains nombres d'ondes. Le tableau II présente les principaux paramètres utilisés dans le calcul, ainsi que les valeurs correspondant aux acides analogues.

TABLEAU I

	61 500	54 600	63 000	59 000	57 000	55 000	53 000	65 000	67 000	50 000
Log cal.	6,57	7,67	6,53	6,46	6,21	7,78	7,14	6,39	6,15	9,69
Log mes.	6,57	7,67	6,52	6,47	6,19	7,76	—	—	—	—

TABLEAU II

XH	p	q	C	D_e	m	l
FH	38 185	17 506	1 687	50 216	306	336
ClH	61 305	20 232	637,2	42 000 ?	115,5	100,32
BrH	71 289	10 325	645,4	39 000 ?	116,8	94,8
IH	52 337 60 553	10 695 11 895	615,9 623,8	33 000	115,6	88,2

Les valeurs de p et q déterminent la forme de la courbe d'énergie potentielle de l'état excité. D'après le tableau II, on voit que les valeurs numériques des différentes constantes s'écartent nettement de celles des autres hydracides ; cela montre une fois de plus que cet acide, malgré ses apparences, n'est pas comme les autres hydracides : HCl, HBr et HI.

c) HYPOTHÈSE SUR L'EFFET DE LA TEMPÉRATURE SUR L'ABSORPTION DE L'ACIDE FLUORHYDRIQUE GAZEUX. — En examinant les courbes de la figure 12 nous remarquons que l'effet de la température présente quelques anomalies avec d'autres hydracides analogues.

On voit sur ces courbes que l'absorption croît avec la température

[1] Dans le prochain paragraphe, nous expliquerons la raison d'après laquelle la courbe théorique a été comparée à la courbe expérimentale tracée à la température la plus élevée de l'expérience.

plus rapidement (entre 16°5 et 35° C) et plus lentement entre 100° et 165° C. Or, en dessinant la courbe de variation du poids moléculaire du gaz fluorhydrique en fonction de la température d'après les données de Simons (27) (fig. 20), nous remarquons que cette courbe suit au moins approximativement les mêmes variations que l'absorption, c'est-à-dire qu'elle aussi varie plus rapidement pour les faibles températures que pour les températures relativement élevées. Si on suppose, avec le même auteur, que l'acide gazeux, à la température ordinaire, est formé d'un mélange simple de $(FH)^1$ et de $(FH)^n$, dans lequel $n = 6$, et que le nombre de molécules associées et simples

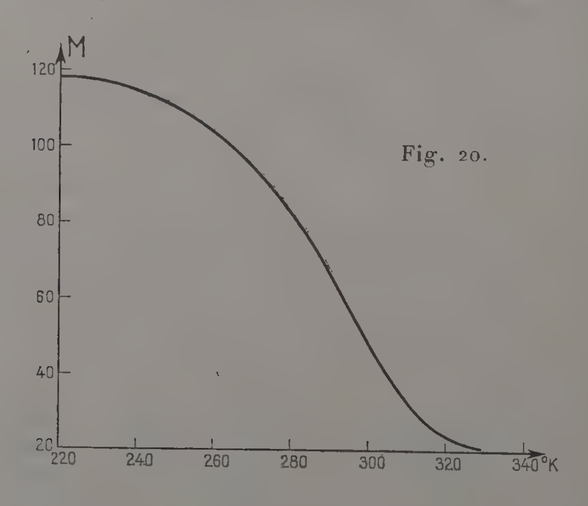


Fig. 20.

varie avec la température sous une pression déterminée, nous pouvons dire que l'augmentation de l'absorption est due à l'augmentation du nombre de molécules $(FH)^1$ c'est-à-dire que l'absorption continue à partir de 100° est due à l'acide dissocié.

Toutefois, dans cette hypothèse les variations de l'absorption au-dessus de 100° C sont inexplicables, étant donné la valeur élevée de la fréquence vibratoire ($4\,141$ cm$^{-1} = \nu$) (qui interdit un effet de la température sur $(FH)^1$) et la dissociation complète de l'acide à ces températures. Elles ne seraient compréhensibles que si l'on attribuait cette absorption à une molécule FH perturbée par l'action des molécules voisines. Cette perturbation subsistant même aux températures où la densité reste normale.

On peut aussi faire l'hypothèse avec Evans et Glockler (42) qu'à n'importe quelle température et pression, il reste toujours une quantité d'acide polymérisé dont le degré d'association est variable suivant les conditions de l'expérience ; de même attribuer l'augmentation de l'absorption à partir de 100° à la dissociation partielle des

molécules associées et par conséquent à l'augmentation du nombre de molécules simples FH.

Energie de dissociation. — On sait que l'énergie de dissociation d'une molécule diatomique est définie ordinairement comme le minimum d'énergie nécessaire pour séparer les deux atomes (à l'état stable) d'une molécule non excitée. Si l'énergie potentielle U d'une molécule, dans un état électronique donné, est exprimée comme une fonction de la distance r des deux noyaux, l'énergie de dissociation sera définie par l'expression :

$$D_e = U_{r=\infty} - U_{r=r_e}$$

dans laquelle r_e est la distance d'équilibre des noyaux.

Mais l'energie de dissociation réelle D étant inférieure à l'énergie théorique exprimée ci-dessus d'une quantité égale à l'énergie du niveau $v = 0$, on peut écrire :

$$D = D_e - hc \, . \, G(0).$$

Or :

$$G(0) = \omega_e/2 - x_e\omega_e/4$$

c'est-à-dire :

$$D = D_e - hc(\omega_e/2 - x_e\omega_e/4)$$

et en utilisant la relation :

$$D_e = \frac{\omega_e^2}{4x_e\omega_e} \qquad (1)\,(40,\ p.\ 27)$$

on a :

$$D = \frac{(\omega_e - x_e\omega_e)^2}{4x_e\omega_e}.$$

D'après les valeurs des constantes vibrationnelles calculées par les transitions $3 \leftarrow 0, 4 \leftarrow 0$ par Kirckpatrick et Salant (39) ($x_e\omega_e = 83$, $\omega_e = 4\,123$) on trouve :

$$D \doteq 140 \text{ Kcal./mol.} = 6{,}07 \text{ ev.}$$

Cette valeur est en accord satisfaisant avec la valeur trouvée par Gaydon (40) d'après les données thermochimiques : cela veut dire que la relation (1) est vérifiée avec une bonne approximation dans le cas de la molécule considérée.

Or, on sait d'après Born et Franck (43, 44 et 45) que toutes les molécules diatomiques ioniques, surtout les composés halogénés à l'état de vapeur, possèdent une région d'absorption continue. Ils ont une limite vers les grandes longueurs d'onde, variable suivant la substance. Quand une radiation de cette longueur d'onde limite tombe sur le corps, l'électron passe de l'halogène sur le métal ou sur

l'hydrogène ; phénomène qui a pour effet de décomposer la molécule en ses deux atomes neutres suivant la réaction :

$$XH + h\nu = X + H.$$

Une fois que la dissociation a lieu, l'énergie lumineuse est absorbée d'une manière continue ; car les deux atomes se séparent l'un de l'autre avec n'importe quelle énergie cinétique.

D'après ces théories, on peut avoir une notion sur la valeur de l'énergie de dissociation des composés gazeux, en tenant compte de leur limite d'absorption vers les grandes longueurs d'onde. Il faut signaler que cette hypothèse est assez mal fondée, étant donné que le seuil de l'absorption dépend de la précision avec laquelle on mesure les coefficients d'absorption.

Partant de là, et acceptant la valeur de l'énergie de dissociation trouvée par Gaydon ($6{,}1 \pm 0{,}3$ ev) qui s'accorde bien avec la valeur calculée plus haut (6.07 ev), on trouve pour la limite d'absorption la valeur de : $\nu = 49\,200 \pm 2\,400\ \mathrm{cm}^{-1}$.

Or, en examinant la courbe d'absorption à 165° (fig. 12) on voit qu'elle tend asymptotiquement vers la droite $\nu = 50\,000\ \mathrm{cm}^{-1}$. Par conséquent, on peut penser que l'absorption présentée par la courbe à 165° est bien due aux molécules de l'acide fluorhydrique gazeux, totalement ou presque totalement dissociées sous l'effet de la chaleur. De plus, on peut facilement remarquer que l'effet de la température entre 100° et 165° peut se traduire en multipliant tous les coefficients d'absorption par un facteur constant. Les deux courbes à 100° et à 165° sont superposables par une translation ; ce qui montre que seul le nombre de molécules $(FH)^1$ varie en fonction de la température, et que les deux courbes d'absorption C et D dans lesquelles l'acide est à l'état dissocié sont bien dues aux molécules dissociées.

D'après tous ces arguments, nous pouvons conclure que même à la température où l'acide a été supposé jusqu'ici complètement dissocié, une partie des molécules reste à l'état non dissocié. Le nombre de ces molécules diminue à mesure que la température augmente ; cette question sera éclaircie par l'étude de l'absorption du gaz fluorhydrique aux températures plus élevées. De plus, ainsi que nous l'avons vu au dernier chapitre, l'application des formules théoriques se rapportant à l'absorption de l'acide gazeux porté à 165° donne des résultats satisfaisants. Cela peut être un autre argument favorable à notre hypothèse.

B) Absorption infra-rouge et effet Raman.

Nous parlerons d'abord de l'acide fluorhydrique à l'état gazeux pour lequel nous n'avons que des résultats relatifs à l'infra-rouge.

a) Acide gazeux. — Nos résultats confirment ceux de Buswell,

Maycock et Rodebush (46) et les précisent, étant donné une meilleure détermination de l'intensité des bandes observées.

En outre, certaines données nouvelles permettent de reprendre la discussion de l'ensemble du spectre.

On peut résumer comme suit les conclusions qui découlent de notre étude :

1) *La bande vers 4 000 cm⁻¹* (fig. 16, 21). — Cette bande correspond bien à la bande fondamentale du gaz fluorhydrique non associé, conformément à toutes les observations antérieures.

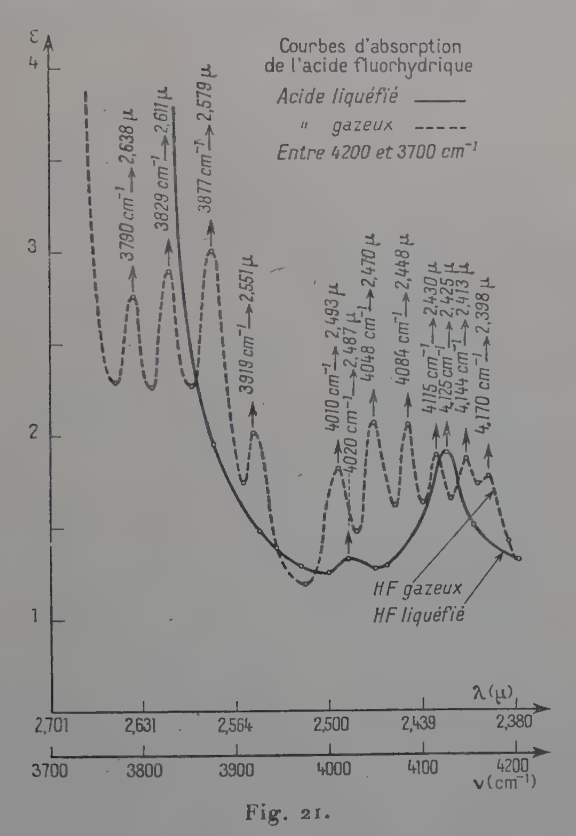


Fig. 21.

La structure de rotation, à la précision de nos mesures, concorde, en effet, avec celle de Imes (34) ou de Buswell et ses collaborateurs (46) (Espacement des raies de rotation de l'ordre de 40 cm⁻¹ dans les branches P et R et la raie P(0) manquante).

2) *La bande principale vers 3 320 cm⁻¹ et la bande secondaire vers 3 580 cm⁻¹* (fig. 16). — L'ensemble de ces bandes conformément

aux conclusions de Buswell et ses collaborateurs (46) est certainement dû aux molécules associées. Il est extrêmement vraisemblable qu'elles correspondent à la fréquence fondamentale de vibration de l'atome H dans la molécule associée. Cependant, comme on sait que l'ion $(FHF)^-$ a une fréquence fondamentale beaucoup plus faible (1 450 cm^{-1})(47), une étude de l'infra-rouge plus lointain serait utile pour préciser l'attribution de cette bande; mais l'intensité que nous avons mesurée ($\varepsilon = 50$) montre que cette bande est très intense vers 3 320 cm^{-1}. En effet, des mesures de Ketelaar sur KHF_2 (48) on peut déduire, en se basant sur une densité de 2,37 pour le cristal, soit une concentration moléculaire de 30,5 mole/litre de KHF_2, les valeurs suivantes :

Pour la bande (double) vers 2,67 μ, $\varepsilon \# \frac{170}{61} \# 2{,}8$ et pour les bandes fondamentales à 1 450 et 1 220 cm^{-1}, $\varepsilon \# \frac{3\,000}{61} \# 49$ (en rapportant ε à une liaison F-H comme l'a été fait précédemment et non à l'ion $(F\text{-}H\text{-}F)^-$ qui contient deux telles liaisons). L'intensité de la bande que nous observons pour l'acide associé correspond bien à celle d'un fondamental de KHF_2 et son attribution paraît donc assez sûre.

Buswell et ses collaborateurs (46) avaient déjà observé que la bande associée était double ; ils rapprochaient l'écartement des deux maxima de l'écartement des maxima des branches P et R de la molécule FH non associée, qui est du même ordre. Ils considéraient d'ailleurs que cela n'est probablement qu'une coïncidence fortuite, et n'en tiraient aucune conséquence. D'autre part, Glockler et Evans (49) ont cherché à interpréter l'existence de la bande double 2,049 μ (3 675 cm^{-1}) et 2,729 μ (3 664 cm^{-1}) de l'ion $(FHF)^-$, qu'ils croyaient être un fondamental, comme un dédoublement par « inversion » dû à un double minimum d'énergie potentielle. Depuis que Ketelaar a montré que cette bande n'est pas un fondamental, l'interprétation ci-dessus est devenue inutile pour expliquer le dédoublement qui est celui d'un harmonique supérieur. Toutefois, des considérations analogues pourraient être évoquées dans le cas de FH associé en chaîne. Nous croyons cependant que l'origine de la bande secondaire à 3 580 cm^{-1} est autre. En effet :

1) Cette bande a une intensité beaucoup plus faible, dans notre cas ($t = 20°$ C, $p = 1$ Atm.) que la bande principale vers 3 320 cm^{-1}. Buswell et ses collaborateurs qui ont opéré dans des conditions où l'association est moins complète observent au contraire une intensité plus forte pour 3 580 cm^{-1} que pour la bande de plus faible fréquence.

2) Il existe incontestablement une structure pour la bande vers 3 580 cm^{-1} qui n'avait pas été observée jusqu'ici (fig. 22). Les bandes observées sont espacées d'environ 30 cm^{-1} ; mais cet espacement n'est pas très régulier, les deux intervalles extrêmes correspondant à environ 40 cm^{-1} ; mais la précision de nos mesures est insuffisante pour tirer une conclusion de ces irrégularités. Les deux observations

ci-dessus pourraient s'expliquer si l'on admet que dans la région de grandes fréquences de la bande d'association correspond à la fréquence fondamentale de vibration d'une liaison FH susceptible de tourner avec un moment d'inertie faible de l'ordre de celui de la molécule isolée FH. L'hypothèse la plus simple est d'admettre que cette partie de la bande contient le spectre d'un dimère F-H—F⟍H (angle α) qui tournerait autour de l'axe F-H-F. On pourrait également penser que l'origine de cette partie de la bande est une liaison FH en bout de chaîne

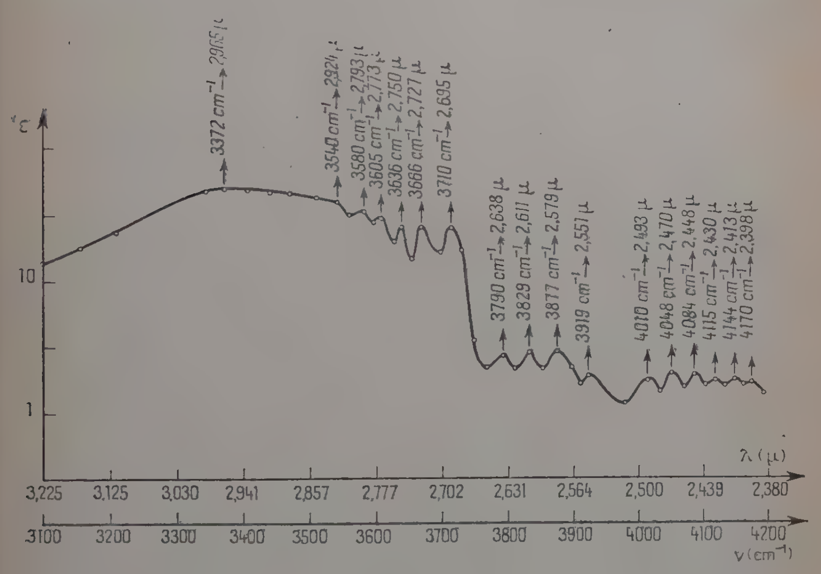


Fig. 22.

qui aurait une rotation libre autour de l'axe F-H-F voisin, c'est-à-dire par rapport à l'ensemble de la molécule. Dans les deux hypothèses ci-dessus, le nombre de liaisons susceptibles de rotation augmente quand l'association diminue à partir des conditions d'association maximum (c'est-à-dire de nos conditions expérimentales), puisque les chaînes vraisemblablement se raccourcissent et la concentration en dimère croît; cela rend donc bien compte de la différence d'intensité entre les résultats de Buswell, Maycock, Rodebush et les nôtres.

Une discussion plus détaillée de la structure de cette bande semble prématurée à cause de sa faible résolution et le manque de données sur la variation de sa structure en fonction de la température. Toutefois, étant donné que l'espacement de cette structure est du même

ordre de grandeur que celui de la bande de FH isolé, il est utile de s'assurer que la structure de cette deuxième bande ne saurait s'étendre jusqu'à la région où nous observons la bande « secondaire », d'autant plus qu'il n'y a pas de discontinuité réelle entre ces deux structures (fig. 22), sauf dans la région de montée rapide du coefficient d'absorption où se trouvent des bandes atmosphériques.

Ces bandes parasites rendent difficile de savoir avec certitude l'absence ou la présence d'une structure du gaz à étudier dans cette région.

On sait que l'intensité $\mathcal{I}$ d'une raie de rotation d'une molécule diatomique s'exprime approximativement par la relation :

$$\mathcal{I} = C(j' + j'' + 1)e^{-E_r/KT}$$

j'' et j' étant les nombres quantiques de rotation pour l'état initial et l'état final, $E_r = hcB''J''(J'' + 1)$, avec B'' (pour l'état le plus bas) égale à $h/8\pi^2cI$, I étant le moment d'inertie. Dans le cas de FH, on a : $B'' \# 20$ cm^{-1}.

Dans notre cas, la branche considérée est la branche P, la première raie P (1) est vers 3 919 cm^{-1} sur notre figure 22 ; si la bande appelée « secondaire » est la continuation de la bande de FH isolée, la raie 3605 cm^{-1} qui serait probablement la raie P (9) ou P (8) d'après le dénombrement des raies et d'après sa fréquence, les intensités seraient :

$$\text{P (1)}\ \mathcal{I}_1 = C.2e^{-2B''/0,7T}$$
$$\text{P (8)}\ J_8 = C.16e^{-72B''/0,7T}$$
$$\text{P (9)}\ J_9 = C\ 18e^{-90.B''/0,7T}$$

D'où à 20° C les rapports $\mathcal{I}_9/\mathcal{I}_1 \# 0,002$ et $\mathcal{I}_8/\mathcal{I}_1 \# 0,008$. Or, la raie 3 605 cm^{-1} a une intensité du même ordre que la raie P (1), donc il est impossible qu'elle soit due à la molécule FH isolée.

Si l'on admet les hypothèses qui précèdent, l'intervalle observé (30 cm^{-1}) permet de se faire une idée de l'angle de la liaison F-H par rapport à l'axe F-H---F. La diffraction électronique donne (50) un angle $\alpha = 140° \pm 5°$; d'autre part, la diffraction des rayons X donne (51) pour FH à l'état solide un angle de 134°, confirmant l'ordre de grandeur de la valeur trouvée dans le gaz : pour celui-ci on trouve en outre que l'atome H se trouve à peu près en ligne droite avec les deux atomes F, mais la précision de cette donnée n'est que de 15° seulement. En supposant la structure F-H---F parfaitement rectiligne la valeur de l'espacement ci-dessus, qui conduit à une constante de rotation de 15 cm^{-1}, ne saurait s'expliquer que par un angle α proche de 90°, sinon le moment d'inertie serait trop petit et la constante de rotation calculée plus grande que la valeur expérimentale ; en

effet, la distance r_{ass} de F-H dans la molécule associée doit être de l'ordre de 1 Å, valeur moyenne trouvée par Bauer et Beach (50); elle n'est sûrement pas supérieure à cette valeur en bout de chaîne, c'est-à-dire dans la portion qui nous intéresse; le moment d'inertie $I_{ass} \# r_{ass}^2 . M . H \sin^2 \alpha$ alors que celui de FH isolé est voisin de $r_{aas}^2 . MH$ avec $r = 0{,}92$ Å sauf pour $\sin \alpha \# 1$, I_{ass} doit être plus petit que I_{libre} et l'intervalle des raies de rotation supérieur à 40 cm^{-1}.

Cette conclusion au sujet de l'angle α est proche de celle déduite par Briegleb (52) de la considération de positions d'équilibre dans l'hypothèse des interactions purement électrostatiques, toutefois, elle semble difficile à concilier avec les conclusions ci-dessous concernant la symétrie de la molécule, déduites des spectres infra-rouges et Raman du liquide et avec les résultats de la diffraction électronique (50). En fait, cette conclusion n'est pas nécessaire si l'on admet que la structure F-H- - -F n'est pas rigoureusement rectiligne, un angle avec $\alpha = 140°$ suffirait pour rendre compte de l'intervalle spectral observé.

La structure de rotation de la bande « secondaire » comme il a été dit ne saurait être analysée en détail; il est à noter qu'on ne semble pas observer une raie zéro d'intensité nulle, bien que le premier intervalle 3 710 cm^{-1}-3 666 cm^{-1} soit nettement supérieur aux autres; mais la distribution des intensités semble difficile à interpréter. Il est possible que plusieurs structures se chevauchent, dues à des édifices moléculaires différents (dimère et bout de chaîne par exemple).

On peut rapprocher la structure observée de celle de CH_3OH trouvée par Borden et Barker (53) et correspondant à la rotation libre de OH; l'intervalle est de 40 cm^{-1}, ce qui donne une distance OH de 0,92 Å (voir 54, p. 498). Ces bandes ont également une structure très complexe vraisemblablement due au fait que la rotation n'est pas entièrement libre. Dans l'hypothèse d'une rotation du dimère, on peut également rapprocher nos résultats de ceux trouvés pour les molécules asymétriques, comme H_2O ou H_2S (54, p. 488 par exemple); la constante de rotation B(0) pour K = 0 a la valeur 14,5 cm^{-1} donnant un espacement de 29 cm^{-1}. En outre, on sait que la distribution des intensités, dans le cas des molécules asymétriques, peut être très variée et ne pas comporter, en particulier, une branche centrale intense quand les constantes de rotation sont très différentes dans l'état initial et l'état final.

Le centre et la partie des faibles fréquences de la bande d'association n'ont pas de structure. Il est probable qu'elles correspondent suivant l'une ou l'autre des hypothèses ci-dessus :

soit à des vibrations des atomes H qui ne sont pas en bout de chaîne (même dans le cas du dimère); soit simplement à l'ensemble des vibrations F-H dans diverses liaisons d'une chaîne pour les polymères

supérieurs au dimère (qui ne peuvent tourner rigidement avec un moment d'inertie faible).

L'attribution de la bande « secondaire » au dimère nous semble plus vraisemblable, étant donné que la présence du monomère est certaine du fait de la structure de la bande à 4 000 cm⁻¹. La bande non résolue vers 3 300 cm⁻¹ serait donc probablement due aux polymères supérieurs. D'ailleurs la présence de chaînes de longueurs

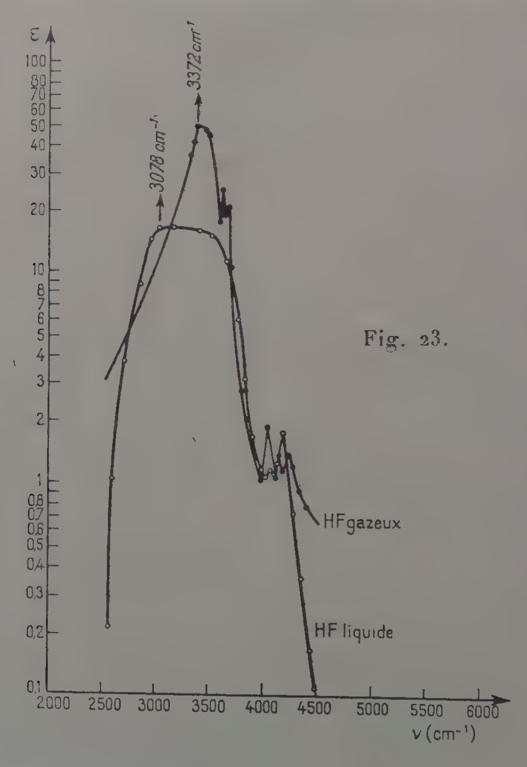


Fig. 23.

différentes est en accord avec les études de diffraction électronique (50) et avec les calculs énergétiques de Briegleb (52).

Suivant ce qui précède, il est possible en se basant sur les coefficients d'absorption mesurés, de se faire une idée sur la concentration en dimère et en monomère dans nos conditions expérimentales.

Supposons, en première approximation, que la valeur du coefficient d'extinction moléculaire ε, rapporté à la masse moléculaire FH = 20 pour les diverses bandes observées, soit simplement proportionnelle à la concentration de l'édifice moléculaire responsable de ces bandes. D'après la figure 23, les valeurs moyennes de ε sont approximativement : 1,7 pour le monomère (vers 4 000 cm⁻¹), 20 pour le dimère

(vers 3 580 cm^{-1}) (mais difficiles à préciser par suite de la montée de la bande continue), et 50 pour les autres polymères ; il en résulte immédiatement que la concentration du monomère ne serait que de l'ordre de 3 o/o environ du nombre total des molécules ; celle du dimère serait de 2/7 # 30 o/o.

Dans ces conditions, en supposant par exemple que le polymère supérieur est $(FH)_6$, on peut calculer la densité, car on aurait alors :

70 o/o de molécules FH sous la forme $(FH)_6$; 30 o/o en $(FH)_2$, avec tres peu de $(FH)_1$. On trouve un facteur d'association moyen (selon Briegleb) de l'ordre de la valeur expérimentale 56/20 (27). Mais cette concordance ne constitue pas une certitude de la présence de $(FH)_6$, car un calcul plus précis demanderait la connaissance des probabilités des diverses transitions envisagées, que nous avons supposées identiques.

b) Acide liquéfié. — Dans la région de la fréquence que nous avons admise comme fondamentale on observe bien la bande d'association (fig. 17, 22) principale, dont le maximum devient moins aigu ; la fréquence du maximum est de ce fait difficile à préciser, si on la prend au centre elle se trouve très peu déplacée par rapport à celle du gaz ; ce fait paraît surprenant au premier abord, étant donné les déplacements importants dus aux actions intermoléculaires qu'on observe dans le cas des corps polaires comme ClH (55), ou H_2O, lors du passage vapeur-liquide. Nous verrons plus loin l'explication que l'on peut donner.

La bande « secondaire » n'apparaît pas dans le liquide; toutefois, dans sa structure de rotation, il est possible qu'elle ne peut être distinguée du fond de la bande d'association principale ; l'existence du dimère n'est donc pas exclue.

La bande du monomère vers 4 000 cm^{-1} apparaît nettement ; elle est très peu déplacée. Ce fait, qui est hors de doute, suggère que le centre réel de la bande d'association est également peu déplacé. Il s'expliquerait par le fait que la polarité de FH est diminuée par la formation des chaînes (50) ; d'ailleurs Gunther, Holm et Strunz (51) admettent qu'entre les chaînes FH dans le solide, les forces se réduisent aux interactions de Van der Waals. On a pensé qu'une rotation, au moins partielle, serait possible à l'état liquide pour une molécule à si faible moment d'inertie que FH. Toutefois, en solution dans CCl_4 une telle structure n'a pas pu être décelée (37). La bande que nous observons dans le liquide ne possède pas non plus une structure de rotation caractérisée ; le fait essentiel est que cette bande est beaucoup plus étroite que celle du gaz considérée dans son ensemble ; cela est certainement dû à la suppression de la rotation, qui dans le cas de FH, élargit énormément la bande vibratoire ; c'est un exemple frappant d'un fait observé (voir Herzberg (54), p. 532) par exemple sur C_6H_6, où les bandes à l'état liquide sont plus étroites qu'à l'état

vapeur. On sait que dans le cas de ClH par exemple (54, 55) dans le liquide les branches P et R ne sont pas observables. Il semble bien qu'on ne les trouve pas non plus dans le cas de FH à l'état liquide, à moins que la branche P ne soit noyée dans la partie montante de la bande d'association.

Sur la figure 17 on remarque un faible maximum à 4 020 cm^{-1}. Si l'on supposait qu'il a une existence réelle, il faudrait admettre qu'il est dû à une rotation ou une vibration quantifiée.

La considération du coefficient d'extinction moléculaire toujours rapporté à 1 molécule FH = 20 par litre, est instructive. En effet, il est pratiquement inchangé pour la bande vers 4 000 cm^{-1}. Bien que pour apprécier correctement les intensités dans une telle comparaison il faudrait évaluer $\int \varepsilon d\nu$. Pour chaque bande, ce résultat approximatif indique, d'une part, que la bande vers 4 000 cm^{-1}, dans le liquide, correspond bien au monomère ainsi que nous l'avons supposé jusqu'ici et, d'autre part, la fraction molaire du monomère est sensiblement la même dans le liquide et dans la vapeur, dans nos conditions expérimentales. Cela signifie que la polymérisation est déjà complète en phase vapeur à 20° C et à la pression atmosphérique. L'intensité de la bande d'association paraît plus faible dans le liquide que dans la vapeur, même si l'on évalue l'aire ; cependant les faibles valeurs de ε dans la vapeur sont mal connues, d'autres mesures sont nécessaires. Il se peut que les forces intermoléculaires agissent davantage sur les liaisons plus lâches F- -H- -F que sur F-H isolé, ce qui pourrait avoir pour effet une variation plus sensible des probabilités de transition (et également des fréquences de vibrations, voir ci-dessus). Quoi qu'il en soit la conclusion certaine c'est que l'ordre de grandeur du degré d'association reste inchangé dans le passage du gaz au liquide.

c) Effet Raman. — En ce qui concerne l'effet Raman, la fréquence que nous pensons avoir observée se retrouve dans la bande infra-rouge à 4 000 cm^{-1} ; elle doit donc être attribuée au monomère ; il n'est pas étonnant qu'elle soit si faible en effet Raman, d'autant plus que la polarisabilité de la molécule FH fortement ionique (57) doit être particulièrement faible.

Pour discuter l'origine des autres bandes infra-rouges observées, admettons la structure de l'acide associé, déjà citée plus haut et qui cadre avec ce qui précède et les travaux antérieurs, c'est-à-dire une structure en chaînes de longueurs variables, mais dont l'élément est :

```
F- - -H- - -F
             \
              H
```

avec H à peu près en ligne droite avec les deux atomes F voisins.

Il est évident que la discussion complète du spectre de vibration-rotation, de tels polymères, devrait tenir compte des diverses vibrations fondamentales de l'ensemble de telles chaînes. Mais comme la base expérimentale de notre discussion consiste uniquement dans l'observation des fréquences fondamentales de la vibration « H » de FH perturbée par l'association, en toute première approximation, les considérations qui suivent ne semblent pas entièrement dépourvues d'intérêt.

Dans une longue chaîne, à part les liaisons voisines des extrémités, l'élément essentiel est peut-être la structure linéaire F-H- -F analogue à celle de l'ion $(FHF)^-$ de KHF^2 ; nous savons que pour l'ion $(FHF)^-$ on admet une structure symétrique (même si le double minimum existe, la barrière de potentiel devant être négligeable) (57, 58).

Dans le cas de l'acide fluorhydrique, il est certain que, dans la chaîne d'association, les positions extrêmes, telles que H_2 ou H_1, ne correspondent pas à une structure symétrique (H_1 : liaison libre peu perturbée ; H_2 : structure F-H-F dissymétrique). Toutefois, la question

```
          /F — H — F\
       H2             H
  F/                   \
                        >F
                  H1  /
```

est beaucoup plus complexe pour les maillons centraux d'une chaîne longue. Il n'y a pas de raison géométrique contre une structure linéaire et symétrique F-H- -F (si l'on néglige la perturbation par liaisons adjacentes qui sont coudées). L'analogie avec l'ion $(FHF)^-$ semble à peu près justifiée pour un maillon central d'une longue chaîne ; mais il est évident que cette analogie ne doit pas être poussée trop loin. En particulier, pour le dimère, on devrait considérer la structure complète FHFK.

Cependant, les résultats de la diffraction électronique (50) montrent la présence de distance F-H = 1 Å environ, et de distances F-H-F égales a 2,55 Å ; ceci permet de douter de la position symétrique du proton. On sait que pour (F-H-F) dans KHF^2, on connaît seulement la distance F-H-F qui est de 2,26 Å (50) et que les calculs de Pauling (57) font penser que la structure est symétrique, ce qui est en accord avec les données expérimentales récentes (43, 47). Nous examinerons donc nos résultats dans l'hypothèse de la structure symétrique et dans l'hypothèse contraire.

a) *Structure* F-H-F *symétrique*. — La fréquence symétrique ν_1 est interdite en infra-rouge, mais permise en effet Raman ; c'est une fréquence « F » essentiellement ; par analogie avec $(F\text{-}H\text{-}F)^-$ on peut la supposer faible ; en infra-rouge nous ne pouvions pas l'observer ; en Raman, nous ne l'avons pas trouvée, mais elle peut avoir été noyée

dans le fond de fluorescence. La fréquence asymétrique ν_3 (fréquence « H » essentiellement) est active en infra-rouge; si, comme nous avons été amenés à le supposer plus haut, la bande 3 320 cm^{-1} est un fondamental, elle correspond à ν_3. Il est difficile alors de concilier cette valeur avec celle admise pour l'ion $(FHF)^-$: $\nu_3 = 1\,450$ cm^{-1}, mais celle-ci paraît bien faible (cf. 47) : une étude de FH dans l'infra-rouge plus lointain paraît nécessaire; la fréquence ν_3 dans les chaînes de FH devrait même être inférieure à celle de $(FHF)^-$, du fait de l'augmentation de la longueur F-H-F. Quoi qu'il en soit, la bande 9 950 cm^{-1} doit être l'harmonique $3\nu_3$ (69). L'absence de $2\nu_3$ s'explique parfaitement dans le cas d'une structure linéaire et symétrique par les règles de sélection (Herzberg (54, p. 262)) en effet, si pour les v pairs les fonctions d'onde ψ'_v de l'état final ont un caractère de symétrie différent de celui du moment polaire μ ce qui annule l'intégrale $\int M\psi'\psi'' dr$. La fréquence ν_2 de déformation devrait être du même ordre que celle de l'ion $(F\text{-}H\text{-}F)^-$ soit 1 220 cm^{-1}, légèrement plus faible à cause de l'augmentation de la la longueur de la liaison; elle est active en IR, mais nous ne pouvons pas en observer le fondamental, par contre, la bande faible à 5 220 cm^{-1} pourrait être une combinaison $2\nu_3 - \nu_2$ (avec un coefficient d'anharmonicité négatif pour ν_3 (cf. 47)). A propos de l'harmonique à 9 950 cm^{-1}, si la fréquence ν_3 est prise au centre de la bande, 3 320 cm^{-1}, l'anharmonicité est faible; si, au contraire, on prend la fréquence du maximum 3 080 cm^{-1}, il faut admettre un coefficient d'anharmonicité négatif et très grand, comme on l'a fait (47) pour l'ion $(FHF)^-$.

b) *Structure* F-H-F *non symétrique*. — Comme précédemment, on doit avoir trois fréquences fondamentales ν_3, ν_2, ν_1, mais la valeur élevée de $\nu_3 = 3\,320$ cm^{-1} n'est pas étonnante; ν_2 ne dépendant pas des constantes de forces de valence peut garder le même ordre de grandeur que pour l'ion $(FHF)^-$ et l'interprétation de la fréquence 5 220 cm^{-1} n'est pas changée; la fréquence ν_1 devrait apparaître en Raman et en IR, mais elle peut être trop loin pour avoir été observée en IR, et trop faible en effet Raman. Le point difficile à expliquer c'est l'absence de la fréquence ν_3 en effet Raman, mais les résultats relatifs à cet effet sont relativement incertains du fait de la fluorescence. La bande 9 950 cm^{-1} est toujours $3\nu_3$. Mais l'absence de $2\nu_3$ ne saurait être due à des considérations de symétrie. Il faut alors s'attacher à considérer une liaison F-H et à étudier, comme l'a fait par exemple Mecke pour C-H (54, p. 265) et Timm et Mecke (17), la variation du moment polaire en fonction de l'écartement r des noyaux; l'intensité d'un harmonique peut être nulle si la variation du moment polaire est faible au voisinage de la distance r qui correspond aux maxima des ψ'_v de l'état supérieur de cet harmonique; dans notre cas, il semble qu'une telle explication soit possible, en effet dans FH

libre (fig. 18) la variation de r pour le premier harmonique à environ 8 000 cm^{-1} est de 0,26 Å, à partir de la position d'équilibre ; si on admet pour F-H- - -F = 2,55 Å, la distance F-H = 1 Å un déplacement de 0.26 correspondrait au milieu de la distance F-H pour lequel le moment polaire est nul ; cette valeur du déplacement n'est pas invraisemblable car le niveau $v_3 = 2$ est plus bas dans le cas de $2\nu_3$, mais la courbe d'énergie potentielle doit être plus plate.

En résumé, une étude plus complète serait nécessaire pour pouvoir faire un choix entre les deux hypothèses ci-dessus. Toutefois, devant l'incertitude des résultats de l'effet Raman, nous pensons que la structure non symétrique est plus probable.

Cette conclusion n'a d'ailleurs qu'une valeur limitée, du fait de l'hypothèse initiale (considération de l'élément FHF seulement) et devrait être confirmée, quand les résultats expérimentaux seront plus complets, par une analyse précise des modes de vibrations des chaînes associées.

CONCLUSION

Les principales conclusions découlant de notre travail sont :

1° Le gaz fluorhydrique présente dans l'ultra-violet un spectre d'absorption très différent de celui des autres hydracides, ce qui montre la différence de nature de sa liaison.

2° Le spectre ultra-violet du gaz présente un effet de température, explicable qualitativement par une variation de l'association.

3° Le niveau électronique excité de la molécule non associée a été déterminé par la méthode de la réflexion (à partir du spectre correspondant à une température suffisamment élevée pour que la polymérisation soit faible), l'énergie de dissociation calculée concorde avec les valeurs admises jusqu'ici.

4° L'effet Raman de FH liquide donne une fréquence faible, dont l'existence n'est pas absolument sûre, mais qui concorde avec la fréquence infra-rouge 4 000 cm^{-1} que nous trouvons dans FH gaz et liquide. Cette fréquence est attribuée au monomère ; la concentration de celui-ci est de l'ordre de quelques o/o.

5° Pour FH gazeux dans l'infra-rouge, les résultats de Buswell-Maycock et Rodebush sont confirmés ; cependant une structure de la bande « secondaire » a été décelée ; cette bande est attribuée au dimère (ou aux liaisons en bout de chaîne) ; la concentration du dimère serait de 30 o/o dans nos conditions expérimentales ; la structure de la bande secondaire donne l'ordre de grandeur de l'angle α dans F-H-F$\diagdown$H (angle α en F)

6° Dans FH liquide, les structures d'association sont très peu différentes de celles du gaz à 20° C et à la pression atmosphérique, la bande fondamentale infra-rouge d'association et celle du monomère étant presque les mêmes dans les deux cas.

7° Dans l'infra-rouge, on observe pour FH à l'état liquide la fréquence fondamentale ν_3 d'association qui est vers 3 320 cm^{-1}, et de celle du monomère vers 4 000 cm^{-1}. On observe l'harmonique $3\nu_3$ mais $2\nu_3$ manque. Cela paraît en faveur d'un arrangement linéaire symétrique F- - -H- - -F ; mais il est plus probable que la structure n'est pas symétrique et que l'absence de $2\nu_3$ est due à une particularité de la variation du moment polaire en fonction de la distance F-H. Dans cette analyse seul l'élément linéaire FHF a été considéré à titre de toute première approximation.

8° Notre travail a été rendu possible grâce à une méthode expérimentale particulière qui peut servir à d'autres études sur l'acide fluorhydrique.

(Travail effectué au Laboratoire de Physique de la Sorbonne).

BIBLIOGRAPHIE

1. Fremy. — *Ann. Chim. Phys.*, 1856 [3], **47**, 5.
2. Gore. — *J. Chem. Soc.*, 1869, **22**, 368 ; *Phil. Trans.*, 1869, **159**, 173.
3. J. Simons. — *J. Am. Chem. Soc.*, 1924, **46**, 2179.
4. Thorp et Hambly. — *J. Chem. Soc.*, 1889, **55**, 163.
5. Ruff et Plato. — *Ber.*, 1904, **37**, 673.
6. Fredenhagen et Cadenbach. — *Z. f. Anorg. und all. Chem.*, 1928, **178**, 289.
7. Poulenc. — *Ann. Chim. Phys.*, 1894, **7**, 5.
8. J. H. Simons. — *Ind. and Engineering Chem.*, 1940, **32**, 183.
9. J. H. Simons. — *Chem. Metall. Engin.*, 1943, **50**, 129.
10. P. Pascal. — *Traité Chim. Min.*, 1931, **1**, 468.
11. P. Pascal. — *Chem. Abst.*, 1948, 2265.
12. R. W. Cloud et S. F. Philp. — *Rev. of Sc. Inst.*, 1950, **21**, 731.
13. J. S. Kirby-Smith et E. A. Jones. — *Rev. of Sc. Inst.*, 1949, **39**; 780.
14. B. Vodar, Freymann et Yeou Ta. — *J. Chem. Phys.*, 1940, **8**, 349.
15. S. Freed, Mc Murry et Rosenbaum. — *J. Chem. Phys.*, 1939, **7**, 853.
16. J. Romand, A. Gilles et B. Vodar. — *C. R.*, 1949, **229**, 876.
17. E. Timm et R. Mecke. — *Z. f. Phys.*, 1936, **98**, 363.
18. J. Strong. — *Modern physical laboratory practice*, London, 194[illegible], 540.
19. J. Surugue. — *Technique générale du laboratoire de physique*, Paris, 1947, **1**, 97.
20. D. Chalonge et M. Lambrey. — *Rev Opt.*, 1929, **8**, 332.
21. J. Romand. — *Ann. Phys.*, Paris, 1949, **4**, 576.

22. Trehin. — *Ann. Phys.*, 1936, **2-5**, 472.
23. Trehin. — *Rev. of Sc. Inst.*, 1950, **21**, 679.
24. Kohei-Siga et Plumley. — *Phys. Rev.*, 1935, **48**, 105.
25. H. J. Plumley. — *Phys. Rev.*, 1936, **49**, 405.
26. J. Mayence, J. Romand et B. Vodar. — *C. R.*, 1949, **228**, 1799.
27. J. Simons et J. H. Hildebrand. — *J. Am. Chem. Soc.*, 1924, **46**, 2189.
28. R. W. Long, J. H. Hildebrand et W. E. Marrell. — *J. Am. Chem. Soc.*, 1943, **65**, 182.
29. M. F. J. Taboury. — *Bull. Soc. Chim.*, 1942, **10**, 205.
30. Ch. Sannie, L. Amy et Paremski. — *C. R.*, 1936, **202**, 1942.
31. L. A. Woodward. — *Phys. Z.*, 1931, **32**, 777.
32. L. A. Woodward et H. J. Tyrrell. — *Trans. Faraday Soc.*, 1942, **38**, 513.
33. B. Vodar. — *Thèse Paris*, 1944.
34. Elmer et S. Imes. — *Astrophys. J.*, 1919, **50**, 251.
35. C. Scheafer et M. Thomas. — *Z. f. Phys.*, 1923, **12**, 330.
36. E. O. Salant et D. E. Kirkpatrick. — *Phys. Rev.*, 1934, **46**, 318.
37. A. M. Buswell, R. L. Maycock et W. H. Rodebush. — *J. Chem. Phys.*, 1940, **8**, 362.
38. D. E. Kirkpatrick et E. O. Salant. — *Phys. Rev.*, 1935, **48**, 945.
39. Jevons. — *Report on band spectra of diatomic molecules*, London, 1932, 276.
40. A. G. Gaydon. — *Dissociation energies and spectra of diatomic molecules*, London, 1947, 188.
41. Raynor et C. Johnson. — *An introduction to molecular spectra*, London, 1949, 52.
42. C. E. Evans et G. Glockler. — *J. Chem. Phys.*, 1948, **16**, 329.
43. Born et Franck. — *Z. f. Phys.*, 1925, **31**. 44.
44. M. S. Desai. — *Proc. Roy. Soc.*, 1932, **136**, 76.
45. C. F. Goodeve et A. W. V. Taylor. — *Proc. Roy. Soc.*, 1936, **154**, 181.
46. A. M. Buswell, R. L. Maycock et W. H. Rodebush. — *J. Chem. Phys.*, 1939, **7**, 856.
47. K. S. Pitter et E. F. Westrum. — *J. Chem. Phys.*, 1947, **15**, 526.
48. J. A. A. Ketelaar. — *Rec. Trav. Chimie*, Pays-Bas, 1941, **60**, 523.
49. G. Glockler et C. E. Evans. — *J. Chem. Phys.*, 1941, **9**, 775.
50. S. H. Bauer, J. J. Beach et J. H. Simons. — *J. Am. Chem. Soc.*, 1939, **61**, 19.
51. P. Gunther, K. Holm et H. Strunz. — *Z. f. Phys. Chem.*, 1939, B, **43**, 229.
52. Briegleb. — *Z. f. Phys. Chem.*, 1949, B, **51**, 9.
53. Borden et Barker. — *J. Chem. Phys.*, 1938, **6**, 553.
54. Herzberg. — *Infrared and Raman spectra-Polyatomic molecules*, New-York, 1946.
55. B. Vodar, Freymann et Yeou-Ta. — *J. Phys.*, 1938, **9**, 282.
56. N. B. Hannay et C. P. Smyth. — *J. Am. Chem. Soc.*, 1946, **68**, 171.
57. Pauling. — *Nature of the chemical bond*, Cornell Univ. Press, 1940, 297.
58. L. Helmholz et M. T. Rogers. — *J. Am. Chem. Soc.*, 1939, **61**, 2590.

59. Deussen. — *Z. Anorg. Chem.*, 1905, **44**, 300.
60. Thomsen. — *Therm. Untersuch.*, **1**, 158 ; **2**, 415.
61. Wan Laar. — *J. Chim. Phys.*, 1920, **18**, 278.
62. W. M. Latimer et W. H. Rodebush. — *J. Am. Chem. Soc.*, 1920, **42**, 1419.
63. Mallet. — *Am. Chem. J.*, 1881, **3**, 189.
64. H. A. Bensi et C. P. Smyth. — *J. Chem. Phys.*, 1947, **15**, 337.
65. M. L. Huggins. — *J. Org. Chem.*, 1937, **1**, 407.
66. R. M. Bozorth. — *J. Am. Chem. Soc.*, 1923, **45**, 2128.
67. J. H. Simons et J. W. Bouknight. — *J. Am. Chem. Soc.*, 1932, **54**, 129.
68. A. L. Wahrhaftig. — *J. Chem. Phys.*, 1940, **8**, 349.
69. E. Safari et J. Romand. — *C. R.*, 1949, **229**, 1003-05.
70. J. Romand et E. Safari. — *C. R.*, 1950, **231**, 1050-52.
71. E. Safari, J. Romand et B. Vodar. — *J. Chem. Phys.*, 1951, **19**, 379.
72. E. Safari, B. Vodar et R. Coulon. — *C. R.*, 1951, **232**, 2415-18.

SPECTRE DE VIBRATION DES CRISTAUX DE DICHLORURE D'HYDRAZINIUM

Par L. COUTURE et J.-P. MATHIEU

SOMMAIRE. — Le spectre des vibrations internes de l'ion $N_2H_6^{++}$ présente des complications dues à l'existence de liaisons par hydrogène avec les ions Cl^-. Le spectre de basse fréquence, qui a pu être entièrement interprété, donne des indications sur les constantes de force intervenant dans les vibrations de translation et de rotation des ions.

1. DONNÉES EXPÉRIMENTALES

Le dichlorure d'hydrazinium $Cl_2N_2H_6$ donne des cristaux cubiques appartenant au groupe T_h^6 — Pa3. L'étude de sa structure au moyen des rayons X (4) montre que la maille élémentaire contient quatre molécules, que les ions Cl^- ont la symétrie propre C_3 et que les deux atomes N d'un ion $N_2H_6^{++}$ sont situés sur un même axe ternaire. Les atomes H, dont la position n'est pas déterminée par l'étude précédente, sont probablement situés entre les atomes N et Cl, car la distance de ceux-ci est inférieure à la somme de leurs rayons ioniques ; cette situation donne aux ions $N_2H_6^{++}$ la configuration *trans* et la symétrie propre C_{3i}.

On obtient le composé en gros cristaux limpides ayant la forme d'octaèdres réguliers (faces [111]), en évaporant lentement à 18° C une solution saturée, contenant un excès d'acide chlorhydrique. On a taillé ces cristaux de façon à étudier l'effet Raman transversal dans les cas d'observation que nous avons désignés précédemment (2) par 2*a*, 2*b* et 3*a* : la mesure du facteur de dépolarisation des raies permet alors de classer, suivant leur type de symétrie, les oscillations fondamentales qui leur correspondent.

Le tableau I donne, pour les raies que nous avons observées, leur nombre d'onde $\Delta\nu$ (en cm^{-1}), leur type de symétrie et l'appréciation qualitative de leur intensité. On voit que les raies se distribuent dans deux domaines de fréquences : entre 50 et 200 cm^{-1} se situent les

raies dues aux oscillations externes des ions ; entre 1 000 et 3 000 cm^{-1}, celles que produisent les oscillations internes des ions complexes $N_2H_6^{++}$.

TABLEAU I

Δν	Type	Intensité	Δν	Type	Intensité
67	E_g	f	2 251	A_g (ou E_g) + F_g	F, d
82	F_g	m	2 613	F_g	m, d
98	$A_g + F_g$	F	2 660	F_g	f, d
223	F_g	F	~ 2 690	?	f, d
230	E_g	F	2 745	F_g	F, d
246	$A_g + F_g$	TF	2 872	F_g	m
			2 945	F_g	m
1 027	$A_g + F_g$	F	2 978	A_g	mf
1 105		f	~ 3 045	A_g	f
1 524	$A_g + F_g$	m	~ 3 085	A_g	f
1 599	$E_g + F_g$	mf	~ 3 190	?	f
2 002 }	F_g	f, d			
2 025 }	?	tf, d			

F = forte ; m = moyenne ; f = faible ; d = diffuse.

2. ANALYSE DU SPECTRE DES OSCILLATIONS INTERNES

Dans ce domaine, nous trouvons toutes les raies (¹) dont les nombres d'onde ont déjà été mesurés par Anantakrishnan (1) sur le composé en poudre ; nos résultats sont systématiquement supérieurs de quelques cm^{-1} à ceux de cet auteur.

Un ion $N_2H_6^{++}$, de symétrie C_{3i}, possède six oscillations fondamentales actives en diffusion : trois sont simples et totalement symétriques, trois doublement dégénérées. Par couplage de ces vibrations entre les quatre ions de la maille [cf. (2), p. 532], chaque oscillation simple donne quatre oscillations de la maille actives en diffusion : une simple de type A_g et trois dégénérées entre elles, donnant une vibration triple de type F_g. Chaque oscillation double de l'ion donne dans la maille une oscillation double (type E_g) et deux oscillations triples (type F_g).

D'après l'ordre de grandeur de sa fréquence, nous attribuons la

(¹) Sauf la raie 2 805 cm^{-1} qui, excitée sur nos clichés par la raie 4 047 Å du mercure, est recouverte par la forte raie 1 027 cm^{-1} excitée par 4 358 Å.

forte raie 1 027 cm^{-1} à la vibration de valence N — N, comme Edsall l'avait déjà fait dans son étude du dichlorure d'hydrazinium en solution (5). Le couplage ne sépare pas la raie simple de la triple, d'une quantité décelable; mais la polarisation montre qu'il y a superposition de deux raies, de types de symétrie différents. Les raies à 1 524 et 1 599 cm^{-1} sont, d'après leur type, probablement dérivées des deux vibrations de déformation des groupes NH_3, respectivement symétrique et dégénérée. La raie 1 105 cm^{-1} provient peut-être de la vibration de déformation $H_3N — NH_3$. Quant à la faible bande à 2 002-2 025 cm^{-1}, elle ne peut provenir que de l'harmonique de la vibration 1 027 cm^{-1}.

Au-dessus de 2 500 cm^{-1}, on doit s'attendre à trouver les raies dérivées des vibrations de valence N — H. Celles-ci sont au nombre de deux (une simple et une double) dans chaque groupe $—NH_3$; mais par suite de la présence d'un centre de symétrie dans $N_2H_6^{++}$, leur nombre n'est pas accru. Le couplage entre les ions doit donner au total quatre fréquences ($1A_g$, $1E_g$, $3F_g$). Cette région du spectre ne contient aucune raie forte de type A_g que l'on pourrait attribuer à la vibration N — H totalement symétrique. Mais on y trouve, au total, beaucoup plus de raies qu'il n'y a d'oscillations fondamentales actives. Cette complication du spectre de haute fréquence donne un nouvel exemple (3) des perturbations causées par la présence des liaisons hydrogène sur des vibrations qui ont une forte anharmonicité, car des atomes H y prennent part. Nous avons cherché si certaines raies observées peuvent être attribuées à des harmoniques. Ainsi, les raies 3 045 et 3 190 cm^{-1} pourraient être dues respectivement aux harmoniques $2 \times 1\,524$ et $2 \times 1\,599$. D'autres raies pourraient résulter d'harmoniques ou de combinaisons d'oscillations dont les fondamentales, antisymétriques par rapport au centre de l'ion $N_2H_6^{++}$, seraient inactives dans la diffusion, mais actives en absorption (type F_u). L'examen du spectre infrarouge de la substance en poudre n'a montré, entre 1 350 et 1 550 cm^{-1}, qu'une bande à 1 486 cm^{-1}. Sa première harmonique pourrait rendre compte de la raie Raman observée à 2 978 cm^{-1}.

3. ANALYSE DU SPECTRE DES OSCILLATIONS EXTERNES

Tous les résultats expérimentaux concernant le spectre de basse fréquence sont nouveaux, l'étude de la poudre n'ayant pas permis à Anantakrishnan d'observer ce spectre.

Chaque ion Cl^- possède trois degrés de liberté de translation. Les ions $N_2H_6^{++}$, au contraire, n'effectuent pas de translation dans les oscillations externes actives en diffusion, car ils ont un centre de

symétrie ; chacun d'eux a trois degrés de liberté de libration. Un degré de liberté pour Cl^- et un pour $N_2H_6^{++}$ sont symétriques par rapport à l'axe ternaire et donnent, par couplage entre les quatre familles de la maille, chacun une vibration A_g et une F_g. On trouve bien deux doublets de type $A_g + F_g$, non séparés, à 98 cm⁻¹ et 246 cm⁻¹.

Les mouvements dégénérés par rapport aux axes ternaires consistent en vibrations des ions Cl^- dans des plans normaux à ces axes et en librations des ions $N_2H_6^{++}$ autour d'axes qui leur sont perpendiculaires. Il y a deux oscillations de ce genre, qui donnent par couplage chacune une oscillation de type E_g et deux de type F_g. On trouve en effet un doublet étroit (222-230 cm⁻¹) et un autre plus séparé (67-82 cm⁻¹), ayant les types prévus.

Pour tenter une attribution plus précise des fréquences observées, faisons l'hypothèse que les oscillations de translation des ions Cl^- d'une part, les oscillations de rotation des ions $N_2H_6^{++}$ d'autre part, sont séparées dans les diverses oscillations fondamentales de la maille de même type de symétrie. La vibration $V_{||}$ des ions Cl^- suivant l'axe ternaire pris pour axe des z et les oscillations fondamentales qui en dérivent par couplage sont alors décrites par la seule coordonnée z. En négligeant les forces de couplage, que l'expérience montre faibles, on peut écrire :

$$m\ddot{z} + k_{||}z = 0, \qquad (1)$$

m désignant la masse de Cl^- et $k_{||}$ le coefficient de rappel de l'oscillation harmonique. De même, la vibration double $V_\perp$ des ions Cl^- dans un plan normal à l'axe ternaire et les oscillations fondamentales qui en dérivent sont fonction de deux coordonnées x et y. On a par exemple :

$$m\ddot{x} + k_\perp x = 0. \qquad (2)$$

La libration $L_{||}$ de l'ion $N_2H_6^{++}$ autour de l'axe Oz est fonction d'un angle θ ; elle entraîne un déplacement tangentiel $r\theta$ de chacun des atomes H situés à la distance r de l'axe. Admettons qu'à ce déplacement corresponde une force de rappel $fr\theta$ due, en somme, à la déformation des liaisons par hydrogène N — H — Cl. Le couple de rappel qui s'oppose à la variation de l'angle θ est égal à $6fr^2\theta$ et l'équation de la libration $L_{||}$ est :

$$I\ddot{\theta} + 6fr^2\theta = 0, \qquad (3)$$

I désignant le moment d'inertie de l'ion $N_2H_6^{++}$ par rapport à l'axe ternaire. Quant à la libration doublement dégénérée $L_\perp$, elle fait intervenir deux coordonnées angulaires φ et ψ ; nous n'expliciterons pas les équations du mouvement dans ce cas.

En négligeant les perturbations produites par les forces de couplage entre les ions de la maille, les valeurs des fréquences mesurées, 98 et 246 cm^{-1}, sont solutions des équations (1) et (3). Les valeurs 222-230 ou 67-82 cm^{-1} sont solutions de (2). Le tableau II indique les valeurs des constantes de force $k_{\parallel}$, $k_{\perp}$ et f calculées dans chaque alternative ; leurs valeurs sont exprimées en 10^5 dynes/cm.

TABLEAU II

Nature du mouvement. . .		$V_{\parallel}$ (Cl)	$L_{\parallel}$ (N_2H_6)
Coordonnées		z	θ
Types d'oscillations . . .		$A_g + F_g$	$A_g + F_g$
Attributions	I	$\nu = 98$ cm^{-1} $k_{\parallel} = 0,2$	$\nu = 246$ cm^{-1} $f = 0,03$
	II	$\nu = 246$ cm^{-1} $k_{\parallel} = 1,2$	$\nu = 98$ cm^{-1} $f = 0,005$
Nature du mouvement. . .		$V_{\perp}$ (Cl)	$L_{\perp}$ (N_2H_6)
Coordonnées		x, y	φ, ψ
Types d'oscillations . . .		$E_g + 2F_g$	$E_g + 2F_g$
Attributions	III	$\nu = 67\text{-}82$ cm^{-1} $k_{\perp} = 0,10$ à $0,14$	$\nu = 222\text{-}230$ cm^{-1}
	IV	$\nu = 222\text{-}230$ cm^{-1} $k_{\perp} \simeq 1$	$\nu = 67\text{-}82$ cm^{-1}

L'ensemble des attributions I et III nous paraît préférable à toutes les autres combinaisons possibles, parce qu'il conduit à des valeurs plus raisonnables pour les constantes de force : $k_{\parallel}$ et $k_{\perp}$ sont du même ordre, et environ dix fois plus grandes que f, qui ne fait intervenir que la déformation des liaisons par hydrogène.

4. CONCLUSION

Les spectres révèlent un couplage faible entre les vibrations des différents ions de la maille. On peut donc considérer en première approximation les vibrations d'un ion comme s'il était isolé, ce qui permet un calcul grossier de quelques coefficients de rappel et l'attribution des raies de vibrations externes. On classe sans peine les vibrations internes de plus basse fréquence, mais la région de fré-

quence 2 500 à 3 000 cm^{-1}, relative aux vibrations de valence de l'hydrogène, comporte un nombre de raies floues trop grand dans le cas où les vibrations sont supposées harmoniques.

(Laboratoire de Recherches physiques, Sorbonne).

BIBLIOGRAPHIE

(1) R. Ananthakrishnan. — *Proc. Ind. Acad. Sc.*, 1937, A **5**, 87.
(2) L. Couture et J.-P. Mathieu. — *Ann. Phys.*, 1948, **3**, 521.
(3) L. Couture et J.-P. Mathieu. — *Journ. de Chim. Phys.*, 1952, **49**, 226.
(4) J. Donohue et W. N. Lipscomb. — *Journ. Chem. Phys.*, 1947, **15**, 115.
(5) J. T. Edsall. — *Journ. Chem. Phys.*, 1937, **5**, 225.

Le Gérant : G. Masson.

DÉPÔT LÉGAL : 1954, 1er TRIMESTRE, N° D'ORDRE 1907, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
BARNÉOUD FRÈRES ET Cie, IMPRIMEURS (31.0566), LAVAL, N° 2902. — 3-1954.

L'OSMOSE A LA LUMIÈRE DE LA THÉORIE DES PROCESSUS THERMODYNAMIQUES IRRÉVERSIBLES

Par Kyrille POPOFF (Sofia)

On désigne sous le nom d'osmose un ensemble de phénomènes, caractérisés par le fait que certaines parois sont perméables pour les molécules de quelques corps et imperméables pour les molécules d'autres. Ainsi, par exemple, le palladium ne laisse passer que les molécules d'hydrogène. Dans ce qui suit nous considérons le phénomène d'osmose dans sa forme la plus simple.

Dans une série de publications (1) nous avons établi que les équations différentielles des processus thermodynamiques irréversibles dans un système, adiabatiquement isolé, sont de la forme :

$$\frac{d^2x_i}{dt^2} = X_i, \qquad i = 1, 2, \ldots, n,$$

qui doivent être intégrées dans les conditions :

$$x_i = x_i^0 \text{ pour } t = 0 \qquad \text{et} \qquad x_i = 0 \text{ pour } t = +\infty .$$

Ici l'on a $x_i = \xi_i - \xi_i^0$, où $\xi_1, \xi_2, \ldots, \xi_n$ sont les paramètres, déterminant l'état du système et $\xi_1^0, \xi_2^0, \ldots, \xi_n^0$ les valeurs de ces paramètres à l'état de l'équilibre thermodynamique.

On a posé de plus :

$$X_i = \frac{\partial(-\Delta S)}{\partial x_i},$$

(1) Kyrille Popoff. Sur la thermodynamique des processus irréversibles. *Journal de Mathématiques et de Physique appliquées* (*Z. A. M. P.*), 1952, **3**, 42-51 ; second mémoire *Z. A. M. P.*, **3**, 440-448 ; troisième mémoire à paraître dans le *Z. M. P.*, 1954, **5**.

Kyrille Popoff. *Comptes rendus Acad. Sc. Paris*, 1952, **233**, 648 ; 1953, **236**, 785-786 ; 1953, **236**, 1640-41 ; 1953, **237**, 698-700 ; 1954, **238**, 331-333.

lication périodique bimestrielle.

où ΔS est l'accroissement de l'entropie $S(\xi_1, \xi_2, \ldots, \xi_n)$ autour de l'état d'équilibre thermodynamique :

$$\Delta S = S(\xi_1, \xi_2, \ldots, \xi_n) - S(\xi_1^0, \xi_2^0, \ldots, \xi_n^0) = -\sum_{i,k} g_{ik} x_i x_k, \quad \text{avec} \quad g_{ik} = g_{ki}.$$

Soit M la masse et U l'énergie interne totale d'un gaz, adiabatiquement isolé dans un récipient cylindrique de section 1, partagé en deux parties, de volumes égaux V, par une paroi poreuse, imperméable à la chaleur. Pour avoir à étudier le phénomène pur, nous supposons que la longueur du récipient est très réduite, pour qu'on puisse admettre que les conditions physiques dans chacune des parties sont uniformes.

Soit M_1 la masse du gaz contenu dans la première partie du récipient, u_1, v_1, s_1, l'énergie interne, le volume et l'entropie, rapportés à l'unité de masse, de la première partie du gaz et M_2, u_2, v_2, s_2 les données respectives concernant la seconde partie. L'on a ainsi :

$$(1) \quad \left\{ \begin{array}{l} M_1 + M_2 = M, \qquad M_1 v_1 = V, \qquad M_2 v_2 = V, \qquad M_1 u_1 + M_2 v_2 = U \\ \qquad\qquad\qquad S = M_1 s_1 + M_2 s_2. \end{array} \right.$$

Ces équations définissent quatre des variables $M_1, M_2, v_1, v_2, u_1, u_2$ en fonction de deux d'entre elles, soit en fonction de M_1 et de u_1. D'autre part, S_i étant complètement défini par u_i, v_i, et par conséquent par u_1, M_1, on aura pour l'entropie S de la masse totale :

$$S = S(M_1, u_1).$$

Désignons par M_1^0, u_1^0 les valeurs de M_1 et de u_1, correspondant à l'état d'équilibre thermodynamique. En posant :

$$m = M_1 - M_1^0, \qquad u = u_1 - u_1^0$$

l'on aura :

$$\Delta S = S(M_1, u_1) - S(M_1^0, u_1^0)$$

$$= \frac{\partial S}{\partial M_1} m + \frac{\partial S}{\partial u_1} u + \frac{1}{2}\left[\frac{\partial^2 S}{\partial M_1^2} m^2 + 2\frac{\partial^2 S}{\partial M_1 \partial u_1} mu + \frac{\partial^2 S}{\partial u_1^2} u^2\right] + \ldots$$

les dérivées étant prises pour $M_1 = M_1^0$ et $u_1 = u_1^0$.

L'état de l'équilibre thermodynamique étant défini par les valeurs des variables M_1, u_1 pour lesquelles l'on a :

$$\frac{\partial S}{\partial u_1} = 0, \qquad \frac{\partial S}{\partial M_1} = 0,$$

nous aurons à considérer ΔS sous la forme :

$$(2)\qquad \Delta S = \frac{1}{2}\left[\frac{\partial^2 S}{\partial M_1^2} m^2 + 2\frac{\partial^2 S}{\partial M_1 \partial u_1} mu + \frac{\partial^2 S}{\partial u_1^2} u^2\right]_{M_1 = M_1^0,\, u_1 = u_1^0},$$

où nous avons négligé les termes de degré supérieur à 2.

Les équations différentielles du processus étudié seront, en introduisant un coefficient $\lambda > 0$, caractérisant la perméabilité de la paroi pour les molécules du gaz considéré :

$$(3)\qquad \begin{cases} \dfrac{d^2 m}{dt^2} = \lambda \dfrac{\partial(-\Delta S)}{\partial m} = -\lambda \dfrac{\partial^2 S}{\partial M_1^2} m - \lambda \dfrac{\partial^2 S}{\partial M_1 \partial u_1} u, \\[2ex] \dfrac{d^2 u}{dt^2} = \lambda \dfrac{\partial(-\Delta S)}{\partial u} = -\lambda \dfrac{\partial^2 S}{\partial M_1 \partial u_1} m - \lambda \dfrac{\partial^2 S}{\partial u_1^2} u. \end{cases}$$

Dans le cas où la paroi est imperméable pour les molécules du gaz étudié, l'on aura $\lambda = 0$.

LE CHANGEMENT DE VARIABLE

$$dt = \frac{d\tau}{\sqrt{\lambda}}$$

conduit aux équations :

$$(4)\qquad \begin{cases} \dfrac{d^2 m}{d\tau^2} = -\left(\dfrac{\partial^2 S}{\partial M_1^2}\right)_0 m - \left(\dfrac{\partial^2 S}{\partial M_1 \partial u_1}\right)_0 u, \\[2ex] \dfrac{d^2 u}{d\tau^2} = -\left(\dfrac{\partial^2 S}{\partial M_1 \partial u_1}\right)_0 m - \left(\dfrac{\partial^2 S}{\partial u_1^2}\right)_0 u, \end{cases}$$

les dérivées étant prises pour $M_1 = M_1^0$, $u_1 = u_1^0$.

On voit ainsi que le paramètre λ ne change pas le caractère du phénomène. Son influence se manifeste seulement sur la vitesse avec laquelle le point (m, u) parcourt la courbe intégrale et pas sur la courbe elle-même. Cela revient à changer convenablement la marche du pendule indiquant le temps.

Le phénomène physique étant caractérisé par les conditions $u = m = 0$ pour $t = +\infty$, les intégrales qui nous intéressent correspondent aux racines négatives de l'équation algébrique en r suivante :

$$(5)\qquad \begin{vmatrix} -\dfrac{\partial^2 S}{\partial M_1^2} - r^2 & -\dfrac{\partial^2 S}{\partial M_1 \partial u_1} \\[2ex] -\dfrac{\partial^2 S}{\partial M_1 \partial u_1} & -\dfrac{\partial^2 S}{\partial u_1^2} - r^2 \end{vmatrix} = 0.$$

$(-\Delta S)$ étant une forme quadratique positivement définie, deux des racines de (5) sont positives et deux négatives.

Les résultats qu'on obtient ainsi correspondent au phénomène physique tant que les masses M_1^0, M_2^0 et les énergies u_1^0, u_2^0 sont positives.

Dans le calcul des dérivées secondes qui figurent dans nos équations nous nous servirons de l'expression de la différentielle totale d^2S. Commençons par exprimer dM_2, dv_1, dv_2, du_2 en fonction de $du_1 = du$ et de $dM_1 = dm$.

Des équations (1) on tire d'abord :

$$dM_2 = -dM_1 = -dm,$$

$$dv_1 = -\frac{V}{M_1^2}dm, \qquad dv_2 = -\frac{V}{M_2^2}dM_2 = +\frac{V}{M_2^2}dm,$$

$$M_1du_1 + M_2du_2 + u_1dM_1 + u_2dM_2 = 0, \quad M_2du_2 = -M_1du_1 + (u_2 - u_1)dm,$$

$$dS = (s_1 - s_2)dm + M_1ds_1 + M_2ds_2$$

$$= (s_1 - s_2)dm + M_1\frac{du_1 + p_1dv_1}{T_1} + M_2\frac{du_2 + p_2dv_2}{T_2}.$$

En exprimant toutes les différentielles par dm et du, la dernière de ces relations devient :

$$(6) \quad \left\{ \begin{aligned} dS &= M_1\left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2}\right)du + \left[s_1 - s_2 + \frac{u_2 - u_1}{T_2} + \frac{p_2V}{M_2T_2} - \frac{p_1V}{M_1T_1}\right]dm \\ &= M_1\left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2}\right)du + \left[s_1 - s_2 + \frac{u_2 - u_1}{T_2} + \frac{p_2v_2}{T_2} - \frac{p_1v_1}{T_1}\right]dm. \end{aligned} \right.$$

L'état de l'équilibre thermodynamique étant défini par :

$$\frac{\partial S}{\partial M_1} = 0, \qquad \frac{\partial S}{\partial u_1} = 0,$$

on aura :

$$(7) \qquad \left\{ \begin{aligned} &\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2} = 0, \\ &s_1 - s_2 + \frac{u_2 - u_1}{T_2} + \frac{p_2v_2}{T_2} - \frac{p_1v_1}{T_1} = 0. \end{aligned} \right.$$

La première de ces équations donne :

$$T_1 = T_2 = T_0.$$

On peut donner une autre forme à la seconde. En effet, l'entropie rapportée à l'unité de masse, étant une fonction uniforme de T et de v, ne dépendant du chemin d'intégration, poursuivons l'accroissement $s_1 - s_2$ de l'entropie de l'état (I), défini par (v_1, T_1), à l'état (II), défini par (v_2, T_2) suivant le chemin (IABII) du plan (T, v). Sur (IA) de T_1 à T_0 on a $v_1 = v_A$; sur l'isotherme (AB), de v_A à v_B, on a $T = T_0$, et sur (BII) on a $v = v_B = v_2$ de T_0 à T_2.

En faisant tendre T_1 et T_2 vers T_0, les points (I) et (II) tendent res-

pectivement vers (A) et (B) et la seconde des équations (7) tend vers l'équation :

$$(8)\quad s_A - s_B + \frac{u_B - u_A}{T_0} + \frac{p_B v_B}{T_B} - \frac{p_A v_A}{T_A} = 0, \quad \text{avec} \quad T_A = T_B = T_0.$$

D'autre part, on a sur l'isotherme (AB), $T = T_0$ et :

$$s_A - s_B + \frac{u_A - u_B}{T_0} + \frac{p_B v_B}{T_B} - \frac{p_A v_A}{T_A} = -\frac{1}{T_0}\int_{(B)}^{(A)} v dp.$$

Ainsi l'équation (8) se réduit à :

$$(9)\qquad \int_{(B)}^{(A)} v dp = 0 \qquad \text{avec} \qquad T = T_0.$$

A l'isotherme (AB) du plan (T, v) correspond dans le plan (p, v) une courbe (A_1B_1) sur laquelle on a (9). Pour les gaz v et p sont toujours positifs ; l'aire de la figure correspondante étant nulle, on doit avoir $dp = 0$ et par conséquent $p_A = p_B$. Ainsi, comme au point (A) et au point (B) on a $T_A = T_B = T_0$, les équations (8) avec les équations (1) déterminent l'état de l'équilibre thermodynamique. T et p étant les mêmes pour (I) et (II) à l'état d'équilibre, tous les autres éléments le sont aussi. On aura ainsi $v_1 = v_2$, $u_1 = u_2$, etc. Il est facile de vérifier ce résultat dans le cas des gaz obéissant à la loi de Clapeyron et de van der Waals.

De $V = M_1 v_1 = M_2 v_2$ et $M = M_1 + M_2$, on aura d'abord :

$$M_1 = M_2 = \frac{M}{2}, \qquad v_1 = v_2 = \frac{2V}{M}.$$

De la relation (6), en tenant compte de ce qu'on a :

$$ds = \frac{du + pdv}{T},$$

en négligeant les termes dont la valeur à l'état d'équilibre thermodynamique est nulle, on tire :

$$(10)\qquad d^2S = \frac{M_1}{T_0^2}(dT_2 - dT_1)du + \left[v_2 d\left(\frac{p_2}{T_2}\right) - v_1 d\left(\frac{p_1}{T_1}\right)\right]dm.$$

Dans le cas où le gaz obéit à l'équation de Clapeyron on aura :

$$vd\left(\frac{p}{T}\right) = -\frac{R}{v}\, dv$$

et par conséquent, eu égard à ce qu'à la limite $v_1 = v_2$, on aura :

$$d^2S = \frac{M_1}{T_0^2}(dT_2 - dT_1)du - \frac{R}{v_1}(dv_2 - dv_1)dm.$$

Passant à la limite, on a :

$$dv_1 = -\frac{V}{M_1^2}dm, \qquad dv_2 = \frac{V}{M_2^2}dm = -dv_1, \qquad dv_2 - dv_1 = \frac{2V}{M_1^2}dm.$$

Pour dT on a ([1]) :

$$dT = -\frac{a-p}{c_v}dv + \frac{1}{c_v}du \qquad \text{avec} \qquad a-p = \frac{\partial u(v, T)}{\partial v}.$$

Dans le cas d'un gaz idéal on a $a-p=0$ et par conséquent :

$$dT_2 - dT_1 = \frac{1}{c_v}(du_2 - du_1).$$

Mais en général on a comme nous l'avons vu :

$$M_2 du_2 = -M_1 du_1 + (u_2 - u_1)dm$$

et à l'état d'équilibre thermodynamique :

$$du_2 = -du_1$$

ce qui donne :

$$dT_2 - dT_1 = -\frac{2}{c_v}du.$$

En définitive, on a dans le cas d'un gaz idéal :

(11) $$d^2S = -\frac{2M_1}{T_0^2 c_v}du^2 - \frac{2R}{M_1}dm^2$$

d'où :

$$\left(\frac{\partial^2 S}{\partial u_1^2}\right)_0 = -\frac{M}{T_0^2 c_v}, \qquad \left(\frac{\partial^2 S}{\partial u_1 \partial M_1}\right)_0 = 0, \qquad \left(\frac{\partial^2 S}{\partial M_1^2}\right)_0 = -\frac{4R}{M}.$$

Les équations différentielles du problème, dans le cas d'un gaz idéal, sont par conséquent :

(12) $$\frac{d^2u}{d\tau^2} = \frac{M}{c_v T_0^2}u, \qquad \frac{d^2m}{d\tau^2} = \frac{4R}{M}m.$$

Intégrées avec les conditions à la limite $\lim_{t\to+\infty} m = 0$, $\lim_{t\to+\infty} u = 0$, ces équations donnent :

(13) $$\begin{cases} m = c_1 e^{-2\sqrt{\frac{R}{M}}\tau}, \quad m' = -2\sqrt{\frac{R}{M}}c_1 e^{-2\sqrt{\frac{R}{M}}\tau} = -2\sqrt{\frac{R}{M}}m, \\ u = c_2 e^{-\frac{1}{T_0}\sqrt{\frac{M}{c_v}}\tau}, \quad u' = -\frac{1}{T_0}\sqrt{\frac{M}{c_v}}u. \end{cases}$$

([1]) Voir dans notre mémoire : « Sur la thermodynamique des processus irréversibles » à paraître dans le *Journal de Mathématiques et de Physique appliquées* (*Z. A. M. P.*) (1954).

Les dérivées sont prises par rapport à τ. Le processus est observé avec un pendule qui marque τ.

Dans les relations phénoménologiques d'Onsager, on a dans ce cas :

$$L_{12} = L_{21} = 0.$$

CAS D'UN GAZ RÉEL

Considérons maintenant le cas d'un gaz réel. Ecrivons dans ce cas la formule (10) sous la forme :

$$(14)\left\{\begin{aligned} d^2S &= \frac{M_1}{T_0^2}(dT_2 - dT_1)du + \left[v_2\frac{dp_2}{T_2} - v_1\frac{dp_1}{T_1} - \frac{v_2p_2}{T_2^2}dT_2 + \frac{v_1p_1}{T_1^2}dT_1\right]dm \\ &= \frac{M_1}{T_0^2}(dT_2 - dT_1)du + \left[\frac{v_1}{T_0}(dp_2 - dp_1) - \frac{v_1p_1}{T_0^2}(dT_2 - dT_1)\right]dm. \end{aligned}\right.$$

On a [1] :

$$dT = -\frac{a-p}{c_v}dv + \frac{1}{c_v}du, \qquad a - p = \frac{\partial u(v, T)}{\partial v},$$

$$dp = \frac{\partial v(p, T)}{\partial T} \cdot \frac{du}{\Delta} - \left(c_p - p\frac{\partial v(p, T)}{\partial T}\right)\frac{dv}{\Delta},$$

avec :

$$\Delta = K.\frac{\partial v(p, T)}{\partial T} - c_p\frac{\partial v(p, T)}{\partial p},$$

$$K = \frac{\partial u(p, T)}{\partial p} + p\frac{\partial v(p, T)}{\partial p}.$$

A l'état de l'équilibre thermodynamique on a :

$$du_2 = -du_1, \qquad dv_2 = -dv_1 = \frac{V}{M_1^2}dm$$

et par conséquent :

$$dT_2 = -dT_1,$$

$$\begin{aligned} dT_2 - dT_1 = -2dT_1 &= -2\frac{a-p}{c_v}dv_1 - \frac{2}{c_v}du_1 \\ &= -\frac{2V(a-p)}{M_1^2c_v}dm - \frac{2}{c_v}du, \end{aligned}$$

$$dp_2 - dp_1 = -2dp_1 = -2\frac{\partial v(p, T)}{\partial T}\frac{du}{\Delta} - 2\left(c_p - p\frac{\partial v(p, T)}{\partial T}\right)\frac{V}{M_1^2}\frac{dm}{\Delta}.$$

[1] Voir le mémoire à paraître dans (*Z. A. M. P.*), de 1954.

Avec ces valeurs de $dT_2 - dT_1$ et de $dp_2 - dp_1$ la formule (14) devient :

$$d^2S = -\frac{2M_1}{T_0^2 c_v} du^2 - 2\left[\frac{M_1 V(a-p)}{T_0^2 M_1^2 c_v} + \frac{v_1}{T_0 \Delta} \cdot \frac{\partial v(p, T)}{\partial T} - \frac{v_1 p_1}{T_0^2 c_v}\right] du dm$$

$$- 2\left[\left(c_p - p\frac{\partial v(p, T)}{\partial T}\right)\frac{v_1 V}{T_0 M_1^2 \Delta} - \frac{v_1 p_1 V(a-p)}{T_2^0 c_v M_1^2}\right] dm^2.$$

Ainsi on a pour les dérivées secondes à l'état d'équilibre thermodynamique :

$$\frac{\partial^2 S}{\partial u_1^2} = -\frac{2M_1}{T_0^2 c_v},$$

$$\frac{\partial^2 S}{\partial u_1 \partial M_1} = -\left[\frac{M_1 V(a-p)}{T_0^2 M_1^2 c_v} + \frac{v_1}{T_0 \Delta} \cdot \frac{\partial v(p, T)}{\partial T} - \frac{v_1 p_1}{T_0^2 c_v}\right],$$

$$\frac{\partial^2 S}{\partial M_1^2} = -2\left[\left(c_p - p\frac{\partial v(p, T)}{\partial T}\right)\frac{v_1 V}{T_0 M_1^2 \Delta} - \frac{v_1 p_1 V(a-p)}{T_0^2 c_v M_1^2}\right].$$

Avec ces dérivées on forme les équations différentielles (3). Toutes les quantités qui figurent dans ces dérivées peuvent être obtenues par des mesures directes au laboratoire. L'intégration de ces équations ne présentant aucune difficulté nous nous dispensons de l'effectuer. Ici on a :

$$t = \frac{\tau}{\sqrt{\lambda}}.$$

(Travail de l'Institut de Mathématiques de Sofia (Bulgarie)).

ÉTUDE DES PROPRIÉTÉS STATIQUES DES CHARGES D'ESPACE DU TYPE MAGNÉTRON [1]

Par M. Jean-Loup DELCROIX

I. — INTRODUCTION

La théorie du magnétron a été édifiée en deux temps : de 1921 à 1935 environ, on n'a pas cherché à tenir compte correctement des phénomènes de charge d'espace ; les travaux effectués pendant cette période (1), (2) contiennent des approximations plus ou moins critiquables ; depuis 1935 et surtout depuis 1940 on s'est attaqué à la solution exacte des équations de charge d'espace. L'étude a été menée de front par un grand nombre de théoriciens : Brillouin (3) en France, Allis (6), Slater (7) et Brillouin (8) aux Etats-Unis, Moullin (9), Hartree (10) et Stoner (11) en Angleterre. Le problème est régi en fonctionnement statique par une équation différentielle du second ordre non linéaire ayant des propriétés singulières. Ces propriétés n'ont été complètement comprises que quand on s'est décidé à intégrer numériquement l'équation. Cet effort théorique a été entrepris au début de la dernière guerre à la suite de l'invention du magnétron à cavités. D'un intérêt exceptionnel au point de vue pratique il semble bien que ce tube ait été néfaste au développement de la théorie : il fonctionne en impulsions, est le siège d'oscillations extrêmement intenses, sa géométrie est compliquée ; pour toutes ces raisons une analyse exacte des phénomènes dont il est le siège est totalement impossible ; dans ces conditions ingénieurs et physiciens poussés par la nécessité ont édifié des théories approchées, créé une systématique, recherché des règles de constructions. La conception des magnétrons à cavités est ainsi devenue une technique assez spéciale et perfectionnée cependant que leur réalisation pose des problèmes technologiques délicats.

Mais cette technique n'a plus que de lointains rapports avec le problème posé par Hull il y a une trentaine d'années, problème que l'on peut formuler ainsi : que se passe-t-il quand on soumet une diode cylindrique à un champ magnétique parallèle à l'axe ? Hull a montré que si le champ magnétique est supérieur à une certaine valeur

[1] Thèse présentée le 30 mai 1953 à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques.

critique d'autant plus grande que le potentiel d'anode est plus élevé, les électrons n'atteignent plus l'anode : il y a coupure, le nuage électronique s'arrête quelque part entre anode et cathode. On peut alors se demander quelle est la structure du nuage. Si la charge d'espace est négligeable, le problème est relativement simple et les travaux de Hull l'ont pratiquement résolu. Quand les phénomènes de charge d'espace sont prépondérants, il est beaucoup plus compliqué et il semble qu'aucune expérience fructueuse ne peut être entreprise sans une connaissance approfondie de la théorie. C'est un fait en tout cas que celles qui furent exécutées de 1925 à 1940 n'ont guère fourni de résultats interprétables. De 1940 à 1945 la mise au point des magnétrons à cavités s'est faite comme nous l'avons dit dans un but pratique et selon des méthodes souvent semi-empiriques. La situation paraissait donc fort peu satisfaisante vers 1946 et c'est vers cette époque que des physiciens qui étaient restés à l'écart de son évolution essayaient de la clarifier (Page et Adams (12), Goudet (4), Voge (5)). Plus récemment des mises au point furent publiées par Slater (13) et Brillouin (14) s'inspirant de travaux secrets exécutés pendant la guerre. Cependant, même ces deux éminents physiciens devaient admettre que des questions importantes, sur lesquelles nous reviendrons plus tard, restaient sans réponse.

Conscient de ces difficultés, nous avons entrepris en 1949 une étude approfondie des régimes statiques de charge d'espace. Le point de départ en était le travail de Page et Adams (12) ; comme eux nous avons mis l'accent sur les grandeurs physiques de champ et sur leurs intégrales : distribution de potentiel, densité de charge d'espace, charge d'espace et énergie cinétique totale contenue dans l'atmosphère électronique, temps de transit... Nous nous sommes limités aux régimes statiques : il paraît évident que toute étude des régimes oscillatoires ou transitoires doit commencer par là ; en fait, on sait que les magnétrons engendrent facilement toutes sortes d'oscillations. Conformément aux idées de Gabor (15) nous pensons que les états oscillatoires les plus intéressants au point de vue théorique sont ceux où, sur un régime statique, se superposent de petites oscillations de plasma. Ces régimes peuvent alors se traiter par une méthode de perturbation dont le point de départ est le régime statique. Or, on verra que la théorie prévoit plusieurs régimes statiques : on ne peut étudier les régimes oscillatoires sans savoir quel est celui de ces régimes qui se produit en fait. Le travail que nous présentons ici est donc consacré tout d'abord à une analyse approfondie des propriétés physiques des régimes statiques. Cette étude théorique est suivie de la description d'expériences qui mettent en évidence des transitions entre ces différents régimes. Enfin, une dernière partie à nouveau théorique est une tentative de généralisation de la théorie du magnétron.

II. — CLASSIFICATION DES DIFFÉRENTS TYPES DE MAGNÉTRONS

De manière générale on peut appeler magnétron toute diode dans laquelle existe en tout point un champ électrique et un champ magnétique orthogonaux ; le magnétron de Hull rentre dans cette définition, mais on peut concevoir d'autres types ; la recherche de ces types et l'étude de leurs propriétés générales posent d'ailleurs des problèmes intéressants et difficiles ; par exemple, il est concevable que certains tubes satisfassent à la définition en l'absence de charge d'espace, mais n'y satisfasse plus quand on en tient compte, les lignes de forces du champ électrique étant déformées par la charge d'espace. Les théorèmes généraux résolvant ce genre de problème sont difficiles à démontrer et même à rechercher. Dans le présent travail nous nous contenterons d'étudier un certain nombre de cas particuliers. Le rapprochement de ces divers cas est le premier pas vers la recherche des théorèmes généraux. En fait, quand on recherche les types pratiquement réalisables on n'en trouve que fort peu ; en voici une liste :

— *Magnétron de Hull* (type M_1). Les électrodes sont deux cylindres coaxiaux, cathode à l'intérieur, anode à l'extérieur; le champ magnétique est uniforme et parallèle à l'axe.

— *Magnétron de Hull inversé* (type M'_1). Le champ et les électrodes ont même disposition, à cela près que l'anode est à l'intérieur et la cathode périphérique.

— *Magnétron à champ circulaire* (type M_2). Les électrodes ont la même disposition que dans le type M_1, mais le champ magnétique est celui d'un courant rectiligne indéfini passant selon l'axe ; il varie comme $1/r$ et ses lignes de force sont des cercles coaxiaux aux électrodes.

— *Magnétron à champ circulaire inversé* (type M'_2). Le champ et les électrodes ont la même disposition que dans M_2 à cela près que l'anode est à l'intérieur et la cathode périphérique.

— *Magnétron plan* (type M_0). Les électrodes sont deux plans parallèles ; le champ magnétique est uniforme et parallèle à ces deux plans. Ce type peut être considéré comme un cas-limite de l'un quelconque des quatre types précédents (voir page 27 une discussion plus approfondie de ce passage à la limite).

— *Magnétrons toriques* (types N_1, N'_1, N_2, N'_2). On peut remplacer les systèmes de cylindres coaxiaux par des systèmes de deux tores concentriques. On les obtient en quelque sorte en courbant l'axe des systèmes cylindriques suivant un cercle. Aux quatre types M_1, M'_1, M_2, M'_2 correspondent quatre types toriques N_1, N'_1, N_2, N'_2.

III. — THÉORIE DU MAGNÉTRON DE HULL

Le modèle de Hull est de loin le plus important au point de vue pratique ; du point de vue théorique c'est le type qui donne lieu aux plus grandes complications. Nous l'étudierons donc de manière plus approfondie que les autres.

1. Hypothèses de base. — Nous avons évité autant que possible toute hypothèse et simplification abusive, ainsi que tout raisonnement purement qualitatif. La théorie est toutefois fondée sur les principes suivants :

a) le magnétron est supposé infiniment long dans le sens de son axe : les effets de bord sont négligés ;

b) la vitesse initiale des électrons est supposée nulle ;

c) le champ électrique sur la cathode est supposé nul.

Nous sommes parfaitement conscients de l'importance des effets qui peuvent se produire si l'une de ces hypothèses n'est pas vérifiée ; mais il est évident que ces effets ne peuvent être discutés sérieusement qu'après une étude approfondie du modèle simple que nous proposons.

2. Equations générales de la charge d'espace. Différents régimes. — a) *Equations de la charge d'espace.* — Avec les hypothèses qui précèdent les équations de la charge d'espace s'écrivent :

$$\dot r^2 + r^2\dot\theta^2 = \frac{2e}{m}\,\mathrm{V} \qquad\qquad r^2 + r^2\dot\theta^2 = \frac{2e}{m}\,\mathrm{V} \qquad (1)$$

$$\frac{d}{dt}(r^2\dot\theta) = \frac{e\mathrm{H}}{m}\,r\dot r \qquad\qquad \frac{d}{dt}(r^2\dot\theta) = \mu_0\,\frac{e\mathrm{H}}{m}\,r\dot r \qquad (2)$$

$$\frac{1}{r}\frac{d}{dr}\left(r\,\frac{d\mathrm{V}}{dr}\right) = \frac{4\pi\rho}{\varepsilon_0} \qquad\qquad \frac{1}{r}\frac{d}{dr}\left(r\,\frac{d\mathrm{V}}{dr}\right) = \frac{\rho}{\varepsilon_0} \qquad (3)$$

$$\rho\, r\dot r = \frac{j}{2\pi} \qquad\qquad \rho\, r r = \frac{j}{2\pi} \qquad (4)$$

(u. e. m) (1) (unités Giorgi) (1)

(1) Dans le chapitre III, on a adopté la convention suivante : certaines formules sont écrites en double, sur la gauche de la page en u. e. m. et sur la droite en unités Giorgi rationalisées ; ce sont celles dont la forme change avec le système d'unités ; toutes les autres sont écrites une seule fois au milieu de la page.

j est le courant débité par unité de longueur des électrodes ; pour supprimer des signes moins inutiles dus à la charge de l'électron on a supposé cette charge, la densité de charge d'espace ρ et le courant j mesurés en unités négatives : e, ρ et j sont essentiellement positifs ; on simplifie les équations en posant :

$$\Phi = \frac{2e}{m} V. \tag{5}$$

$$\Omega = \frac{eH}{m} \qquad \Omega = \mu_0 \frac{eH}{m}. \tag{6}$$

L'équation (2) s'intègre une fois pour donner :

$$r\dot{\theta} = \frac{1}{2}\Omega a\left(\frac{r}{a} - \frac{a}{r}\right). \text{ (a rayon de la cathode)} \tag{7}$$

L'équation (1) devient alors :

$$\dot{r}^2 = \Phi - \frac{1}{4}\Omega^2 a^2 \left(\frac{r}{a} - \frac{a}{r}\right)^2. \tag{8}$$

b) *Condition de coupure.* — $\dot{r}^2$ étant nécessairement positif ou nul, on voit que les équations dynamiques (1) et (2) contiennent la condition :

$$\Phi \geqslant \frac{1}{4}\Omega^2 a^2 \left(\frac{r}{a} - \frac{a}{r}\right)^2 \tag{9}$$

reliant Φ, c'est-à-dire le potentiel et r. C'est la condition de coupure ; on voit qu'elle ne dépend pas de la charge d'espace.

c) *Régime de Brillouin.* — On peut satisfaire au système des équations (1) à (4) en supposant que pour toute valeur de r l'inégalité (9) devient une égalité. La solution singulière ainsi définie correspond à $\dot{r} = 0$: les trajectoires sont des cercles. Ce régime singulier introduit pour la première fois par Hull et décrit principalement par Brillouin peut s'étudier sans intégrer les équations de la charge d'espace. Cependant, on peut vérifier qu'il satisfait à la condition de Langmuir (champ électrique nul sur la cathode) ; c'est bien un régime de charge d'espace.

d) *Régimes monodromiques et bidromiques.* — La condition de coupure (9) détermine deux cas très différents selon qu'elle est ou non satisfaite sur l'anode. Si elle est satisfaite sur l'anode, les électrons atteignent celle-ci ; il circule entre les électrodes le courant j par unité de longueur d'électrode ; le magnétron débite. Le formalisme mathématique précédent s'applique directement. Nous disons que le régime étudié est monodromique pour exprimer le fait qu'en tout point du nuage électronique les électrons ont un vecteur vitesse déterminé de façon unique.

Si la condition de coupure n'est pas satisfaite sur l'anode, les électrons ne peuvent l'atteindre, ils ne dépassent pas un certain cylindre intermédiaire de rayon b que l'on peut appeler surface de coupure. On peut alors envisager deux régimes très distincts : le régime de Brillouin correspondant à des trajectoires circulaires autour de la cathode (l'établissement de ce régime pouvant paraître mystérieux disons tout de suite que les cercles en question peuvent être considérés comme les positions asymptotiques de trajectoires en forme de spirales ayant leur origine sur la cathode) ; un autre régime où tous les électrons partent de la cathode et y reviennent après avoir touché la surface de coupure. Nous l'appelons bidromique pour exprimer le fait qu'en tout point du nuage électronique il y a deux vecteurs vitesses distincts (fig. 1). Les équations de la charge d'espace doivent alors être posées de manière légèrement différente : en affectant de l'indice 1 les quantités relatives aux électrons qui vont de la cathode vers la surface de coupure et de l'indice 2 les quantités relatives à ceux qui reviennent, on a :

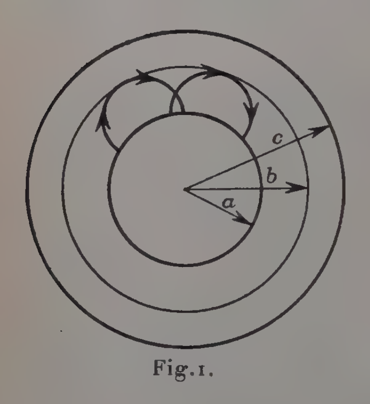


Fig. 1.

$$\begin{cases} \dot{r}_1^2 + r_1^2\dot{\theta}_1^2 = \dfrac{2e}{m}\,V & \ldots\ldots \\ \dot{r}_2^2 + r_2^2\dot{\theta}_2^2 = \dfrac{2e}{m}\,V & \ldots\ldots \end{cases}$$

$$\begin{cases} r_1\dot{\theta}_1 = \dfrac{1}{2}\,\Omega a\left(\dfrac{r_1}{a} - \dfrac{a}{r_1}\right) & \ldots\ldots \\ r_2\dot{\theta}_1 = \dfrac{1}{2}\,\Omega a\left(\dfrac{r_2}{a} - \dfrac{a}{r_2}\right) & \ldots\ldots \end{cases}$$

$$\begin{cases} r_1\dot{r}_1\rho_1 = \dfrac{j_1}{2\pi} & \ldots\ldots \\ r_2\dot{r}_2\rho_2 = \dfrac{j_2}{2\pi} & \ldots\ldots \end{cases}$$

$$\frac{1}{r}\frac{d}{dr}\left(r\,\frac{dV}{dr}\right) = \frac{4\pi(\rho_1 + \rho_2)}{\varepsilon_0} \qquad \ldots\ldots$$

Ces équations sont compatibles et la conservation de l'électricité sur la surface de coupure est satisfaite si l'on pose : $\rho_1 = \rho_2$, $j_1 = -j_2$.

Dans ces conditions les variables r_1, θ_1, ρ_1, V satisfont au système :

$$\dot{r}_1^2 + r_1^2\dot{\theta}_1^2 = \frac{2e}{m}\mathrm{V}$$

$$r_1\dot{\theta}_1 = \frac{1}{2}\,\Omega a\left(\frac{r_1}{a} - \frac{a}{r_1}\right)$$

$$\frac{1}{r_1}\,\frac{dr_1}{d}\left(r_1\,\frac{d\mathrm{V}}{dr}\right) = \frac{4\pi(2\rho_1)}{\varepsilon_0}$$

$$r_1\dot{r}_1 2\rho_1 = \frac{2j_1}{2\pi}\,.$$

Ce système est identique à celui des équations (1) à (4) à cela près que ρ y est remplacé par $2\rho_1 = \rho_1 + \rho_2$ et j par $2j_1$. Autrement dit le formalisme mathématique du paragraphe a) s'applique à condition d'y désigner par ρ la densité totale et par j non pas le courant émis par la cathode mais le courant total traversant un cylindre quelconque coaxial à la cathode. Il faudra se souvenir que le courant émis par la cathode et ensuite réabsorbé n'est que $\frac{j}{2}$ en régime bidromique. On peut aussi remarquer que, quand la coupure se produit, il n'y a aucune discontinuité entre le régime monodromique et le régime bidromique en ce qui concerne les distributions de potentiel et de densité ; par contre, il y a une discontinuité dans le courant émis par la cathode. Quand on passe en régime bidromique la cathode se met brusquement à émettre deux fois moins d'électrons ; ceux-ci reproduisent la même charge d'espace grâce à l'aller et retour qu'ils font alors.

3. Forme réduite des équations de charge d'espace. — Posons d'abord :

$$\dot{r}^2 = \mathrm{U}(r) = \Phi - \frac{1}{4}\,\Omega^2 a^2\left(\frac{r}{a} - \frac{a}{r}\right)^2. \tag{10}$$

L'équation en U s'écrit :

$$\frac{d}{dr}\left(r\,\frac{d\mathrm{U}}{dr}\right) + \Omega^2 a\left(\frac{r}{a} + \frac{a^3}{r^3}\right) = \frac{4e}{m\varepsilon_0}\,j\mathrm{U}^{-1/2}$$

$$\frac{d}{dr}\left(r\,\frac{d\mathrm{U}}{dr}\right) + \Omega^2 a\left(\frac{r}{a} + \frac{a^3}{r^3}\right) = \frac{e}{m\varepsilon_0}\,\frac{j}{\pi}\,\mathrm{U}^{-1/2} \tag{11}$$

Au cours de cette transformation nous avons éliminé la solution singulière de Brillouin qui correspond à U = 0. Poursuivons nos changements de variables en posant comme Page et Adams :

$$p = u^{2/3} = \left(\frac{r}{a}\right)^{2/3}. \tag{12}$$

$$\mathrm{U} = \mathrm{K}p\psi^2(p). \tag{13}$$

$$\mathrm{K}^{3/2} = \frac{9e}{m\varepsilon_0}\,ja \qquad \mathrm{K}^{3/2} = \frac{9}{4\pi}\,\frac{e}{m\varepsilon_0}\,ja. \tag{14}$$

La nouvelle fonction ψ satisfait à l'équation différentielle :

$$p\frac{d}{dp}\left(p\frac{d\psi^2}{dp}\right)+2p\frac{d\psi^2}{dp}+\psi^2+\frac{9}{4}s^2\left(p^2+\frac{1}{p^4}\right)=1 \tag{15}$$

avec :

$$s^2=\frac{\Omega^2a^2}{k}. \tag{16}$$

Enfin posons :

$$\psi^2=y \tag{17}$$

et :

$$p=\mathrm{e}^t. \tag{18}$$

On obtient finalement l'équation réduite :

$$\boxed{y''+2y'+y-\frac{1}{\sqrt{y}}+\frac{9}{4}s^2(\mathrm{e}^{2t}+\mathrm{e}^{-4t})=0} \tag{19}$$

L'équation (15) a été utilisée par Page et Adams ; nous l'avons mise sous la forme (19) parce que sous cette forme elle se prête mieux aux calculs numériques. Elle ne contient que des variables sans dimensions ; t est une variable d'espace ; la cathode correspond à $t=0$; y représente le potentiel à travers les changements de variables ou plutôt l'excès du potentiel sur le potentiel de coupure au point considéré ; quand y s'annule $\dot{r}$ s'annule ; la condition $y\equiv 0$ représente le régime de Brillouin.

Le paramètre s^2 est une combinaison des données physiques du problème :

$$\boxed{s^2=\left(\frac{m\varepsilon_0}{9e}\right)^{2/3}\frac{\Omega^2a^{4/3}}{j^{2/3}}} \qquad \boxed{s^2=\left(\frac{4\pi}{9}\frac{m\varepsilon_0}{e}\right)^{2/3}\frac{\Omega^2a^{4/3}}{j^{2/3}}} \tag{20}$$

Le problème est donc ramené à l'intégration numérique de l'équation (19) ; les conditions aux limites sont :

$$\boxed{y=0\,; \quad y'=0\,; \qquad \text{pour } t=0} \tag{21}$$

Il est en effet facile de voir que ces conditions expriment le fait que le potentiel et le champ sont nuls sur la cathode. On verra par la suite que l'intégrale particulière ainsi définie a en général l'allure repré-

sentée sur la figure 2 ; elle se termine au point B qui est un point singulier ($1/\sqrt{y}$ infini) ; l'abscisse de ce point B définit la valeur de t où se produit la coupure pour la valeur considérée de s ; autrement dit *le résultat principal de l'intégration de l'équation est d'établir une correspondance entre* s *et* b/a.

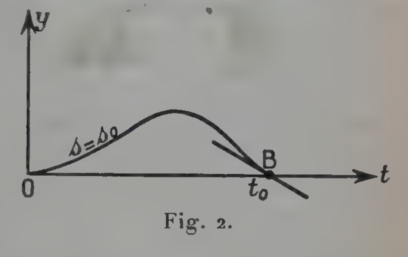


Fig. 2.

4. Paramètres définissant l'état d'un magnétron. Lois d'identité et de similitude. — Avant d'étudier plus à fond l'équation fondamentale on peut faire les remarques suivantes :

a) du point de vue pratique l'*état d'un magnétron est défini par la donnée de quatre paramètres :*

a rayon de la cathode,

c rayon de l'anode,

le champ magnétique que nous introduisons à travers le paramètre Ω,

le potentiel d'anode que nous définirons par la valeur du rapport $m = V/V_{co}$ (V_{co} potentiel de coupure du magnétron considéré) ;

b) en fait nous utilisons dans nos équations les trois paramètres s, a et Ω ou ce qui revient au même d'après ce que nous avons dit : $\frac{b}{a}$, a et Ω. Nous sommes donc amenés à remplacer les paramètres a, c, Ω, m par les paramètres a, b, c, Ω (fig. 3) ; la surface de coupure est

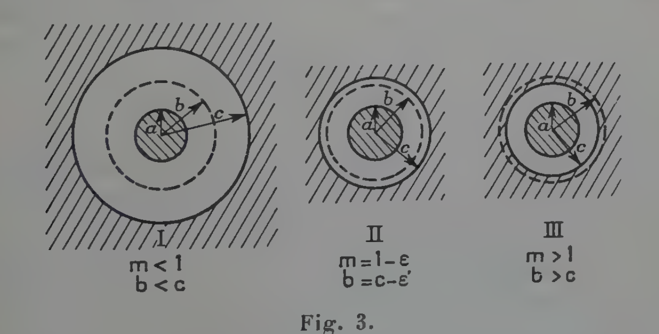


Fig. 3.

virtuelle quand $m > 1$, c'est-à-dire quand le magnétron débite. Ceci dit nous avons pu écrire nos équations au moyen des trois seuls paramètres a, $\frac{b}{a}$ et Ω ; c'est que nous n'avons pas tenu compte de la condi-

tion aux limites imposée par l'anode ; cependant il est facile de voir sur les équations que *la donnée de* a, b/a *et* Ω *définit parfaitement l'état du nuage électronique ;* ceci constitue un théorème d'identité : on peut créer le même nuage électronique d'une infinité de manières ; par exemple les nuages I et II de la figure 3 sont identiques s'ils correspondent à la même valeur de Ω ; ceci s'applique même aux magnétrons en régime de débit (fig. 3, III) moyennant les précisions qui ont été indiquées au paragraphe 2 ;

c) nous définirons donc l'état du nuage électronique par la donnée des paramètres a, Ω et b/a ; cependant *seul* b/a *est réellement important :* deux nuages ayant des valeurs différentes de b/a diffèrent profondément car ils correspondent à deux valeurs différentes du paramètre s^2 et sont représentés par deux courbes distinctes du réseau d'intégrales de l'équation (19) ; au contraire les paramètres a et Ω n'interviennent pas explicitement dans l'équation (19) mais seulement dans les formules précédentes qui définissent les variables réduites, et ce, de façon simple. Donc tandis que les propriétés du nuage électronique dépendent de b/a d'une façon complexe, elles varient de façon simple avec a et Ω. Ces variations constituent des *règles de similitude.* Les règles relatives au paramètre a concerneront des nuages électroniques ayant tous même valeur de b/a et Ω, mais une valeur quelconque de a ; les différents nuages en question sont géométriquement homothétiques. Les règles relatives au paramètre Ω concerneront des nuages ayant tous même valeur de a et b/a mais une valeur quelconque de Ω. Ils sont géométriquement identiques et diffèrent seulement par le champ magnétique. Enfin, on peut ajouter des règles relatives au paramètre e/m ; ces dernières permettent de prévoir les propriétés de nuages constitués non plus avec des électrons, mais avec des ions quelconques. Il y aura donc trois règles de similitude pour toute grandeur physique. La forme de ces règles dépend de la grandeur considérée et peut être obtenue sans intégrer l'équation fondamentale ;

d) d'après ce que nous venons de voir les propriétés du nuage électronique s'étudient commodément en fonction des paramètres a, Ω et b/a ; il n'en reste pas moins que du point de vue expérimental on opère sur un magnétron et que les données sont a, c, Ω et m ; pour être utilisable la *théorie doit permettre de calculer* b/a *en fonction de* c/a *et* m.

5. Intégration de l'équation fondamentale. — L'équation (19) n'est pas intégrable exactement ; pour l'étudier on doit utiliser des méthodes approchées. En fait, seul un calcul numérique donne des résultats complets. La méthode que nous avons utilisée consiste en un découpage en petits intervalles dans lesquels on remplace la fonction par

un développement en série de Taylor ; les opérations ont été effectuées d'abord sur une machine à calculer ordinaire puis sur une machine électronique du type digital. La méthode employée présente un certain intérêt général du point de vue du calcul numérique ; nous comptons l'exposer par ailleurs.

Le réseau des courbes a une structure assez complexe car la forme des courbes change brusquement pour certaines valeurs du paramètre s ; pour pouvoir le représenter clairement nous avons donc utilisé plusieurs graphiques couvrant chacun un intervalle de valeurs de s.

a) Quand $\frac{9}{4}s^2$ varie de zéro à $\frac{9}{4}s_1^2 = 3{,}5$ les intégrales ont l'allure représentée sur la figure 4 ; elles présentent un seul maximum et

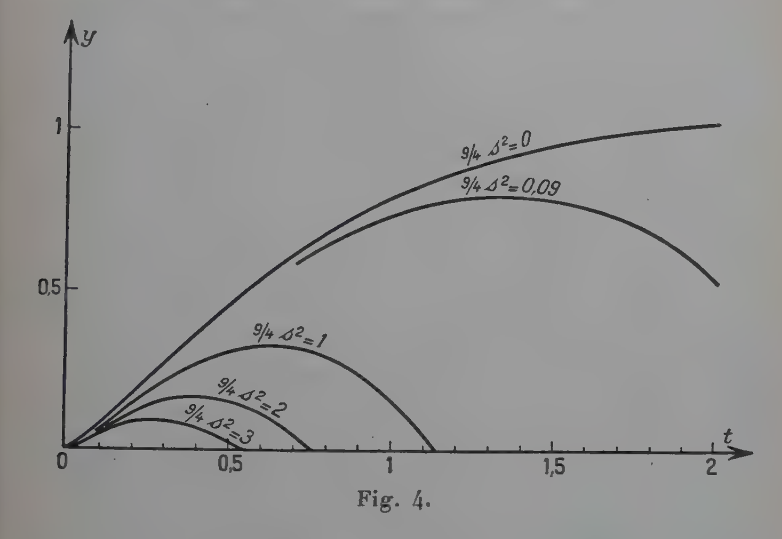


Fig. 4.

redescendent vers l'axe des t qu'elles coupent en un point B d'abscisses t_0 avec la pente y'_0 ; pour $\frac{9}{4}s^2 = 0$, B est rejeté à l'infini ; disons tout de suite que ce cas-limite est celui de la diode sans champ magnétique. Au fur et à mesure que s augmente t_0 et y'_0 décroissent régulièrement. Quand s atteint la valeur s_1, la pente y'_0 s'annule et on constate qu'un deuxième maximum devient possible.

b) Quand s varie de s_1 à une certaine valeur s_2, les intégrales ont l'allure représentée sur la figure 5 ; elles ne rejoignent l'axe des t qu'après deux maxima. La première de ces courbes $\left(\frac{9}{4}s^2 = 3{,}5\right)$ est le prolongement de la courbe correspondante de la figure 4 ; donc quand s franchit la valeur s_1 le point B fait un saut vers la droite ;

ensuite t_0 et y'_0 recommencent à décroître régulièrement jusqu'à ce que pour $s = s_2$, y'_0 s'annule à nouveau.

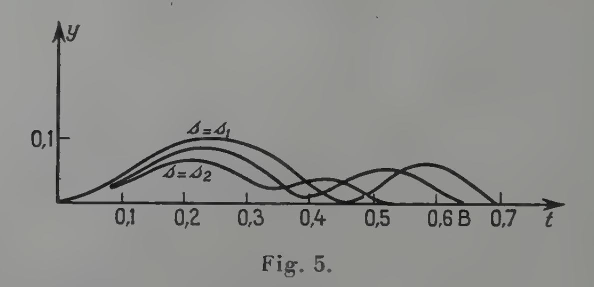


Fig. 5.

c) Quand $s = s_2$, y'_0 s'est annulé sur la figure 5 et un troisième arceau devient possible ; les courbes avec trois arceaux se produisent sur un certain intervalle de valeurs de s ; le processus se répète indéfi-

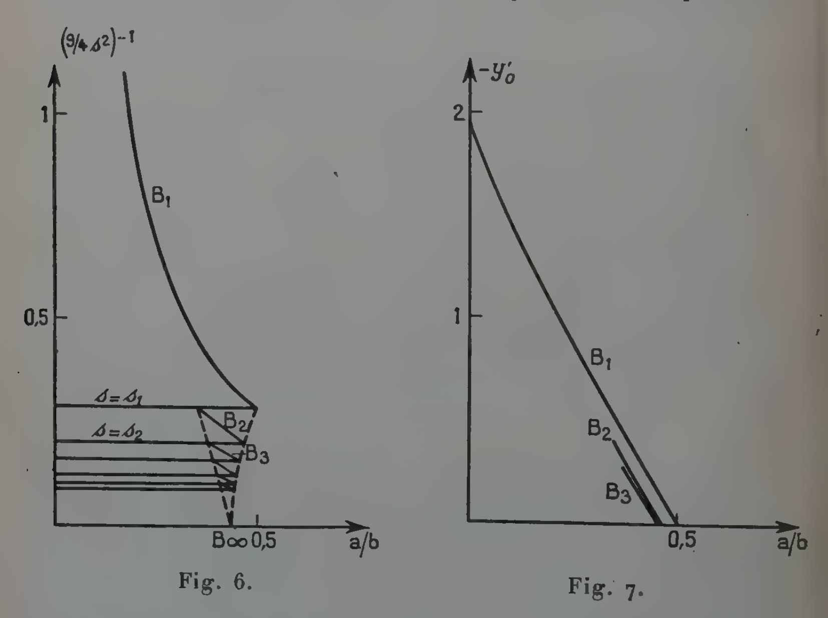


Fig. 6.

Fig. 7.

niment ; quand s tend vers l'infini des régimes de plus en plus complexes apparaissent ; nous appellerons :

— régimes bidromiques simples, B_1 les régimes décrits par les courbes de la figure 4 ;

— régimes bidromiques d'ordre deux, B_2 les régimes décrits par les courbes de la figure 5 ;

— et de manière générale, régimes bidromiques d'ordre n, B_n les régimes décrits par une courbe à n maxima. Au fur et à mesure que l'indice n s'élève, les valeurs de y diminuent si bien que la suite B_n converge vers l'état $y = 0$ c'est-à-dire vers le régime de Brillouin ; cette convergence se passant de façon assez singulière nous l'étudierons de façon plus détaillée au paragraphe 11 de ce chapitre.

d) Les figures 6 et 7 représentent les deux principaux résultats intéressants :

— la relation entre s et $\frac{b}{a}$ (fig. 6) ;

— la relation entre y'_0 et $\frac{b}{a}$ (fig. 7).

Pour plus de commodité on a représenté en abscisse $\frac{a}{b}$.

De ces figures on tire immédiatement les conclusions suivantes :

Pour $\frac{b}{a} < 2$ *les régimes bidromiques sont impossibles. Le régime de Brillouin est le seul régime compatible avec les équations de charge d'espace.*

Pour $\frac{b}{a} > 2{,}9$ *deux régimes sont autorisés par les équations de charge d'espace : le régime de Brillouin et le régime bidromique simple* B_1.

Pour $2 < \frac{b}{a} < 2{,}9$ *les phénomènes sont plus compliqués car des régimes bidromiques d'ordre supérieur sont possibles.*

6. Description du régime de Brillouin. — a) *Distribution de potentiel.* — Les équations (5) et (9) donnent [1] :

$$\boxed{V_0(r) = V^*\left(\frac{r}{a} - \frac{a}{r}\right)^2} \qquad (22)$$

$$\boxed{V^* = \frac{1}{8}\frac{m}{e}a^2\Omega^2} \qquad (23)$$

La formule (22) est valable de $r = a$ à $r = b$.

[1] Dans ce paragraphe et dans les suivants nous affectons de l'indice zéro les grandeurs relatives au régime de Brillouin et de l'indice 1 les grandeurs relatives à l'un des régimes bidromiques B_1, B_2, ..., B_n...

b) *Distribution de charge d'espace.* — Connaissant la distribution de potentiel l'équation de Poisson nous permet d'obtenir celle de la densité de charge d'espace ; on obtient :

$$\boxed{\rho_0 = \rho^*\left(1 + \frac{a^4}{r^4}\right)} \tag{24}$$

$$\boxed{\rho^* = \frac{\varepsilon_0}{8\pi}\frac{m}{e}\Omega^2} \qquad \boxed{\rho^* = \frac{e_0}{2}\frac{m}{e}\Omega^2} \tag{25}$$

c) *Vitesse angulaire.* — La formule (7) s'écrit aussi :

$$\boxed{\dot\theta_0 = \frac{1}{2}\Omega\left(1 - \frac{a^2}{r^2}\right)} \tag{26}$$

Les figures 8 et 9 représentent les variations de $\frac{\rho_0}{\rho^*}$ et $\dot\theta_0$; on y voit que pour les grandes valeurs de $\frac{r}{a}$ le nuage de Brillouin a une densité constante ρ^* et tourne comme un corps solide avec la vitesse

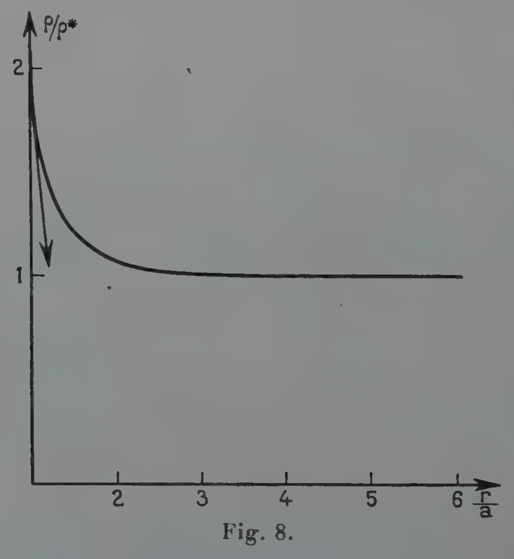


Fig. 8.

angulaire $\frac{\Omega}{2}$; quand $\frac{r}{a}$ tend vers 1, la vitesse angulaire tend vers zéro et la densité vers $2\rho^*$; dans les magnétrons utilisés industriellement $\frac{r}{a}$ varie en général entre 1 et 3 ; ρ_0 prend alors des valeurs intermédiaires entre ρ^* et $2\rho^*$ et $\dot\theta_0$ des valeurs comprises entre 0 et $\frac{\Omega}{2}$.

d) *Charge d'espace totale.* — La charge d'espace totale contenue entre la cathode et la surface de coupure peut se déduire de ρ par une intégration ou par application du théorème de Gauss ; on obtient par unité de longueur dans le sens de l'axe :

$$\boxed{Q_0 = Q^*\left(\frac{b^2}{a^2} - \frac{a^2}{b^2}\right)} \qquad (27)$$

$$\boxed{Q^* = \pi\rho^* a^2} \qquad (28)$$

e) *Courant circulant autour de la cathode ; champ magnétique des électrons.* — Le courant total traversant un plan méridien est, par unité de longueur de l'axe :

$$J = \int_a^b \rho \, . \, r\dot{\theta} \, . \, dr$$

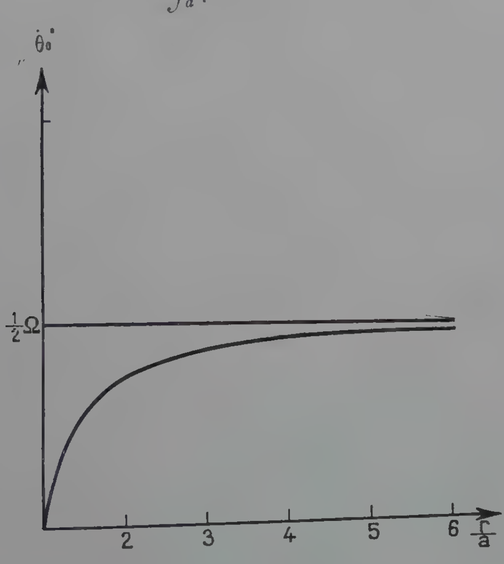


Fig. 9.

soit d'après (7) :

$$J = \frac{1}{2}\,\Omega^2 a^2 \int_1^{b/a} \rho\left(u - \frac{1}{u}\right) du \qquad (29)$$

$$\boxed{J_0 = J^*\left[\frac{1}{2}\left(\frac{b}{a}\right)^2 - \mathrm{Log}_e\left(\frac{b}{a}\right) - \frac{1}{2}\left(\frac{a}{b}\right)^2 + \frac{1}{4}\left(\frac{a}{b}\right)^4 - \frac{1}{4}\right]} \qquad (30)$$

$$\boxed{J^* = \frac{1}{2}\rho^*\Omega a^2} \tag{31}$$

Il est à noter que ce courant circulant crée sur l'axe un champ magnétique H'_0 qui est de sens contraire au champ imposé H ; H'_0 se déduit de J par le théorème d'Ampère :

$$H'_0 = 4\pi J_0 \qquad H'_0 = J_0 \tag{32}$$

H'_0 est en général petit devant H : on peut calculer le rapport H'_0/H (quand ce rapport approche de l'unité, une théorie relativiste devient nécessaire) :

$$\frac{H'_0}{H} = h^* \frac{J_0}{J^*} \tag{33}$$

$$h^* = \frac{\varepsilon_0}{4} a^2 \left(\frac{e}{m}\right)^2 H^2 \qquad h^* = \frac{\varepsilon_0 \mu_0^3}{4} a^2 \left(\frac{e}{m}\right)^2 H^2. \tag{34}$$

f) *Energie cinétique totale de la charge d'espace.* — L'énergie totale contenue dans la charge d'espace se calcule par intégration ; on a par unité de longueur d'axe :

$$\boxed{W_0 = W^*\left[\frac{1}{2}\left(\frac{b}{a}\right)^4 - 2\left(\frac{b}{a}\right)^2 + 2\,\mathrm{Log}_e\left(\frac{b}{a}\right)^2 + 2\left(\frac{a}{b}\right)^2 - \frac{1}{2}\left(\frac{a}{b}\right)^4\right]} \tag{35}$$

$$\boxed{W^* = \pi\rho^* V^* a^2} \tag{36}$$

g) *Puissance rayonnée par le nuage électronique.* — Chaque électron du nuage rayonne sous forme d'onde électromagnétique la puissance :

$$dP_e = \frac{2}{3}\frac{e^2}{c}\gamma^2 \text{ (u. e. m.)} \qquad \ldots\ldots$$

On peut en déduire la puissance totale perdue par le nuage sous forme de rayonnement ; nous admettons que les électrons sont répartis au hasard et que le rayonnement des différents électrons est incohérent ; on a alors pour la puissance totale rayonnée :

$$P_0 = \sum dP_e = \int \frac{\rho dv}{e} dP_e.$$

Soit tous calculs faits :

$$\boxed{\begin{aligned} P_0 = P^*\Big[&\frac{1}{2}\left(\frac{b}{a}\right)^4 - 4\left(\frac{b}{a}\right)^2 + 7\,\mathrm{Log}_e\left(\frac{b}{a}\right)^2 \\ &+ 8\left(\frac{a}{b}\right)^2 - \frac{7}{2}\left(\frac{a}{b}\right)^4 + \frac{4}{3}\left(\frac{a}{b}\right)^6 - \frac{1}{4}\left(\frac{a}{b}\right)^8 - \frac{25}{12}\Big]\end{aligned}} \tag{37}$$

$$\boxed{P^\star = \frac{\pi e}{24c} a^4 \Omega^4 \rho^\star} \quad (\text{u. e. m.}) \quad \ldots\ldots \quad (38)$$

7. Description des régimes bidromiques. — a) *Distribution de potentiel.* — En combinant les équations (10) et (13) nous pouvons écrire :

$$\frac{2e}{m} V_1 = \frac{1}{4} \Omega^2 a^2 \left(\frac{r}{a} - \frac{a}{r}\right)^2 + Kp\psi^2$$

soit d'après (16) :

$$V_1(r) = V^\star \left(\frac{r}{a} - \frac{a}{r}\right)^2 + \frac{4y e^t}{s^2} \quad (39)$$

$$\boxed{V_1(r) = V_0(r) \left[1 + \frac{y e^t}{s^2 \operatorname{sh}^2 \frac{3t}{s}}\right]} \quad (40)$$

Sur la surface de coupure y s'annule $V_1 = V_0$; le potentiel de coupure ne dépend pas de la distribution de potentiel ; pour tout autre point du nuage $V_1 \neq V_0$; la figure 10 représente les deux distributions de

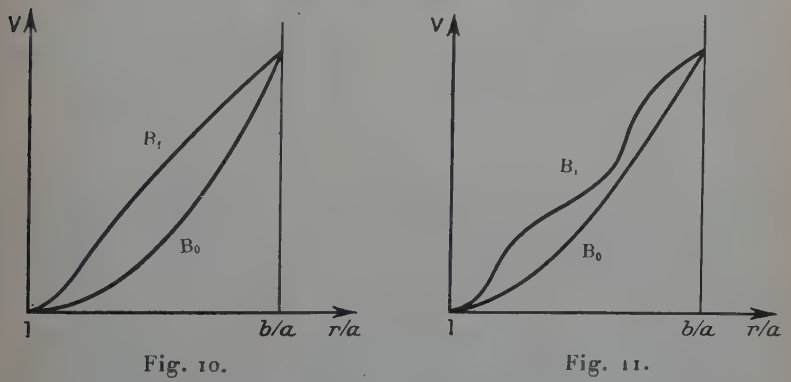


Fig. 10. Fig. 11.

Distribution de potentiel :

Fig. 10 : régime B_0 (courbe inférieure), régime B_1 (courbe supérieure) ;
Fig. 11 : régime B_0 (courbe inférieure), régime B_1 (courbe supérieure).

potentiels de deux nuages ayant mêmes valeurs de a, Ω, et b/a mais situés l'un dans l'état B_0 et l'autre dans l'état B_1. Les régimes bidromiques d'ordre supérieur, quand ils existent, sont également décrits par la formule (40). La figure 11 représente la distribution de potentiel d'un nuage dans l'état B_2 et de son correspondant dans l'état B_0.

b) *Distribution de charge d'espace.* — La formule (4) nous donne :

$$\rho_1 = \frac{j}{2\pi \dot{r} r}$$

soit après transformation :

$$\boxed{\rho_1 = \frac{\rho^*}{\frac{9}{4} s^2 e^{2t} \sqrt{y}}} \qquad (41)$$

La densité de charge d'espace est infinie sur la cathode et sur la surface de coupure ; les figures 12 et 13 représentent schématiquement

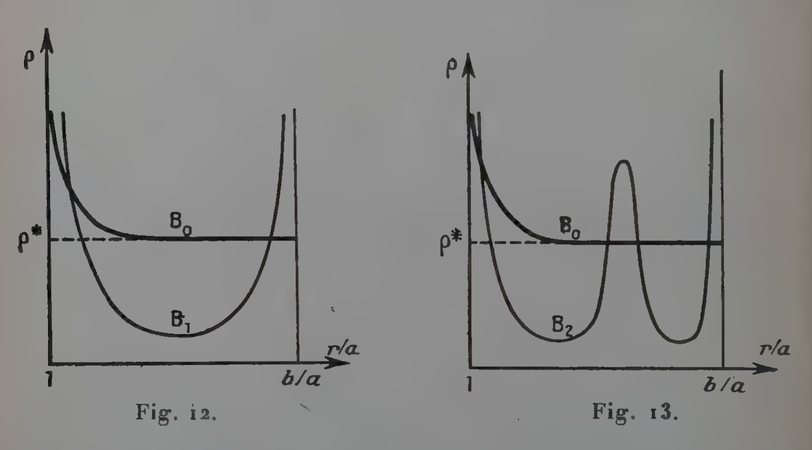


Fig. 12. Fig. 13.

la distribution de charge d'espace pour des nuages dans les états B_0, B_1 et B_2 ayant mêmes valeurs de a, Ω et b/a ; dans le régime B_2 il existe un anneau intermédiaire de densité maxima ; l'amplitude du maximum est d'autant plus grande que s est plus proche de la valeur critique s_1.

c) *Vitesse angulaire.* — D'après la formule (7) la vitesse angulaire est la même, toutes choses égales d'ailleurs, quel que soit le régime considéré ; on a donc la même formule qu'en régime de Brillouin :

$$\boxed{\dot{\theta}_1 = \frac{1}{2}\Omega\left(1 - \frac{a^2}{r^2}\right)} \qquad (42)$$

d) *Charge d'espace totale.* — D'après le théorème de Gauss on a pour deux nuages ayant mêmes valeurs de a, et b/a :

$$\frac{Q_1}{Q_0} = \frac{(dV_1/dr)_{r=b}}{(dV_0/dr)_{r=b}}.$$

Connaissant les expressions de V_0 et V_1 (formules (22) et (40)) on obtient par un calcul simple :

$$Q_1 = Q_0\left[1 + \frac{2y'_0 e^{t_0}}{3s^2 \operatorname{sh} 3t_0}\right] \tag{43}$$

y'_0 et t_0 sont les valeurs de y' et t sur la surface de coupure ; y'_0 est négatif et par conséquent $Q_1 < Q_0$: toutes choses égales d'ailleurs les régimes bidromiques ont une charge d'espace totale plus faible que le régime de Brillouin. Le rapport Q_1/Q_0 ne dépend que de t_0 c'est-à-dire de b/a ; la figure 14 représente ses variations en fonction de a/b pour les divers régimes.

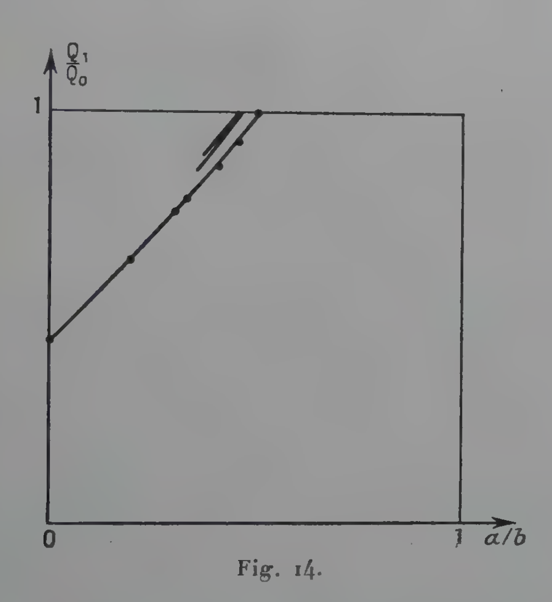


Fig. 14.

e) *Courant radial.* — Nous appelons ainsi la quantité j figurant dans nos équations ; c'est-à-dire le courant total traversant dans un sens ou dans l'autre un cylindre situé entre la cathode et la surface de coupure. D'après l'équation (20), on a :

$$\dot{j}_1 = \frac{m\varepsilon_0}{9e}\frac{\Omega^3 a^2}{s^3} \qquad \dot{j}_1 = \frac{4\pi m\varepsilon_0}{9e}\frac{\Omega^3 a^2}{s^3}$$

$$\dot{j}_1 = \frac{j^*}{s^3} \tag{44}$$

$$\boxed{j^* = \frac{m\varepsilon_0}{9e}\, a^2\Omega^3} \qquad \boxed{j^* = \frac{4\pi m\varepsilon_0}{9e}\, a^2\Omega^3} \tag{45}$$

f) *Temps de transit.* — Nous appelons temps de transit τ_1 le temps mis par un électron pour aller de la cathode à la surface de coupure; il est lié aux grandeurs j_1 et Q_1 par la relation :

$$Q_1 = j_1 \tau_1 \tag{46}$$

d'où :

$$\tau_1 = \frac{Q_1}{j_1} = \frac{Q^*}{j^*}\,(\mathrm{e}^{3t_0} - \mathrm{e}^{-3t_0})s^3\left(1 + \frac{2y_0'\mathrm{e}^{t_0}}{3s^2 \operatorname{sh} 3t_0}\right)$$

$$\boxed{\tau_1 = \tau^*\left[2s^3 \operatorname{sh} 3t_0 + \frac{4sy_0'\mathrm{e}^{t_0}}{3}\right]} \tag{47}$$

$$\tau^* = \frac{Q^*}{j^*} = \pi a^2\,\frac{\varepsilon_0}{8\pi}\,\frac{m}{e}\,\Omega^2\,\frac{9e}{m\varepsilon_0 a^2\Omega^3} \qquad \tau^* = \frac{Q^*}{j^*} = \pi a^2\,\frac{e_0}{2}\,\frac{m}{e}\,\Omega^2\,\frac{9e}{4\pi m\varepsilon_0 a^2\Omega^3}$$

$$\boxed{\tau^* = \frac{9}{8\Omega}} \tag{48}$$

La variation de τ en fonction de a/b se tire de la formule (47) et est représentée sur la figure 15.

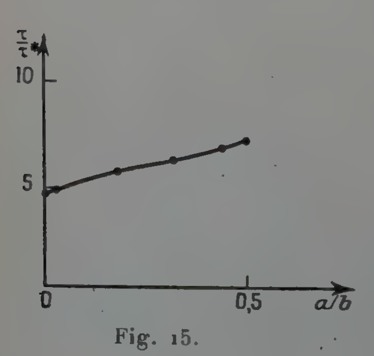


Fig. 15.

Fig. 16.

g) *Courant circulant.* — Appliquons la formule (29) aux régimes bidromiques; nous obtenons tous calculs faits :

$$\boxed{J_1 = J^* \times \frac{2}{3s^2}\int^{t_0} \frac{\mathrm{e}^{t} - \mathrm{e}^{-2t}}{\sqrt{y}}\,dt} \tag{49}$$

Il est intéressant de comparer J_1 au courant radial j_1 ; le rapport $\frac{J_1}{j_1}$ a une signification géométrique simple.

Appelons 2φ l'ouverture angulaire d'un arceau du régime bidromique (fig. 16) :

$$j_1 \times \frac{\varphi}{2\pi} = J_1$$

$$\boxed{\varphi = 2\pi \frac{J_1}{j_1}} \quad (50)$$

Nous avons donc calculé le rapport $\frac{J_1}{j_1}$:

$$\boxed{\frac{J_1}{j_1} = \frac{3s}{8\pi} \int^{t_0} \frac{e^t - e^{-2t}}{\sqrt{y}} dt} \quad (51)$$

la figure 17 représente les résultats obtenus. Nous avons également comparé J_1 au courant J_0 circulant en régime de Brillouin dans un nuage ayant même valeur de a, Ω et b/a (fig. 18).

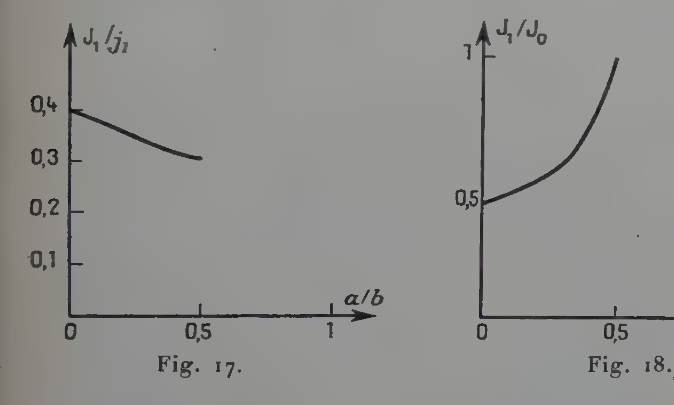


Fig. 17. Fig. 18.

h) *Energie cinétique totale de la charge d'espace.* — On obtient dans ce cas :

$$W_1 = \int \rho V 2\pi r dr$$

$$W_1 = 2\pi \frac{\rho^\star V^\star}{\frac{4}{9} s^2} a^2 \int_0^{t_0} \frac{4 \operatorname{sh}^2 \frac{3t}{2} + 4y e^t / s^2}{e^{2t}\sqrt{y}} e^{3t/2} \frac{3}{2} e^{3t/2} dt$$

$$\boxed{W_1 = W^\star \frac{12}{\frac{9}{4} s^2} \int^{t_0} \frac{e^t}{\sqrt{y}} \left[\operatorname{sh}^2 \frac{3t}{2} + y \frac{e^t}{s^2}\right] dt} \quad (52)$$

Les formules (35) et (52) permettent de comparer les valeurs des énergies W_0 et W_1 pour des nuages ayant même valeur de a, Ω et b/a; la figure 19 représente les résultats obtenus ; on y voit que tant que

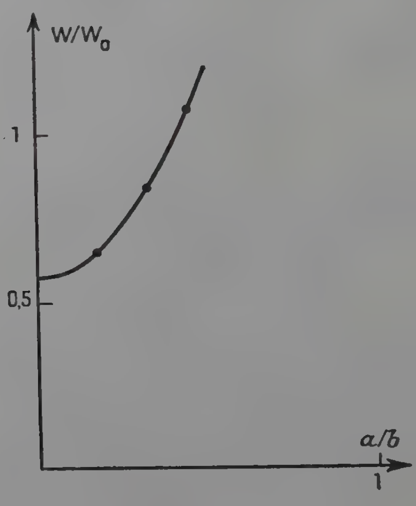


Fig. 19.

$\frac{b}{a} > 2{,}4$ le régime B_1 contient moins d'énergie que B_0 ; au contraire B_1 a plus d'énergie que B_0 quant $2 < \frac{b}{a} < 2{,}4$.

8. **Relations de similitude et ordres de grandeurs.** — *a*) Nous avons mis les différentes grandeurs physiques caractérisant un nuage électronique sous la forme :

$$G_0 = G^* F_0\left(\frac{b}{a}\right) \qquad \text{pour le régime de Brillouin}$$

$$G_1 = G^* F_1\left(\frac{b}{a}\right) \qquad \text{pour les régimes bidromiques}$$

La même quantité G^* apparaît dans ces deux expressions : c'est une fonction simple de $\frac{e}{m}$, a et Ω qui dépend de la grandeur considérée mais non du type de régime. Nous pouvons donc donner des règles de similitudes qui sont valables pour tous les régimes. Cependant Ω et $\frac{e}{m}$ ne sont pas indépendants puisque Ω contient $\frac{e}{m}$; nous donnons donc des règles relatives aux trois paramètres indépendants a, H et $\frac{e}{m}$; le tableau ci-contre les résume ; dans chaque cas nous avons indiqué la puissance de a, H ou $\frac{e}{m}$ dont dépend la grandeur considérée ; par exemple le courant circulant varie comme :

$$a^2 H^3 \left(\frac{e}{m}\right)^2.$$

Grandeur considérée	a	H	$\frac{e}{m}$
Potentiel V	2	2	1
Densité de charge d'espace	0	2	1
Vitesse angulaire	0	1	1
Charge d'espace totale Q	2	2	1
Courant radial j	2	3	2
Courant circulant J	2	3	2
Temps de transit	0	— 1	— 1
Energie cinétique totale W	4	4	2
Puissance rayonnée P [1]	4	6	5

[1] P est une quantité qui fait intervenir l'aspect particulaire de l'électricité ; elle dépend non seulement de $\frac{e}{m}$ mais aussi de e.

b) Afin de préciser les ordres de grandeurs des diverses quantités, nous donnons, dans le tableau ci-après, les valeurs dans deux cas particuliers.

a	1 mm.	7,5 mm.
H	100 œrstedts	1 500 œrstedts
e/m	1,759 10^7 u. e. m.	1,759 10^7 u. e. m.
V^*	2,199 volts	27 830 volts
ρ^*	7,777 10^{-11} coulomb/cm³	1,750 10^{-8} coulomb/cm³
Ω	1,759 10^9 u. e. m.	2,638 10^{10} u. e. m.
Q^*	2,443 10^{-12} coulomb/cm.	3,092 10^{-8} coulomb/cm.
j^*	3,820 10^{-3} A/cm.	725,2 A/cm.
J^*	6,840 10^{-4} A/cm.	129,9 A/cm.
τ^*	6,395 10^{-8} sec.	4,263 10^{-9} sec.
W^*	5,373 10^{-5} erg/cm.	8,607 10^3 erg
P^*	5,201 10^{-10} erg/sec./cm.	18,74 erg/sec./cm.
b/a	2	2
$V_0\left(\frac{b}{a}\right)$	4,948 volts	62 620 volts
$V_1\left(\frac{b}{a}\right)$	4,948 volts	62 620 volts
$\rho_0\left(\frac{b}{a}\right)$	8,263 10^{-11} coulomb/cm³	1,859 10^{-8} coulomb/cm³
$\rho_1\left(\frac{b}{a}\right)$	∞	∞
Q_0	9,161 10^{-12} coulomb/cm.	1,159 10^{-7} coulomb/cm.
Q_1	9,161 10^{-12} coulomb/cm.	1,159 10^{-7} coulomb/cm.
j_0	0	0
j_1	1,969 10^{-3} A/cm.	373,8 A/cm.
J_0	6,481 10^{-4} A/cm.	123,0 A/cm.
J_1	6,481 10^{-4} A/cm.	123,0 A/cm.
τ_0	∞	∞
τ_1	4,653 10^{-9} sec.	3,102 10^{-10} sec.
W_0	1,742 10^{-4} erg/cm.	2,790 10^4 erg/cm.
W_1	2,083 10^{-4} erg/cm.	3,337 10^4 erg/cm.
P_0	7,395 10^{-10} erg/sec./cm.	26,65 erg/sec./cm.
φ	110°	110°

Le premier cas (colonne de gauche) est un cas typique des expériences à faible puissance que nous avons faites et qui seront décrites plus loin ; le deuxième cas (colonne de droite) définit une limite supérieure des ordres de grandeurs réalisables : il correspond à l'un des plus puissants magnétrons que l'on ait construits (type HP 10 V).

9. Position de la surface de coupure. — Dans des conditions expérimentales données, on ne connaît pas *a priori* la position de la surface de coupure ; les données sont a, c et le potentiel d'anode qu'on peut introduire sous la forme du paramètre $m = V/V_{co}$. Pour déterminer la position de la surface de coupure il faut accorder les distributions de potentiel calculées dans le nuage électronique à un harmonique sans charge d'espace (potentiel en $\text{Log}_e\, r$) s'étendant de $r = b$ à $r = c$. Or pour une même valeur de b/a le champ électrique sur la surface de coupure dépend du régime considéré. Il est plus faible pour les régimes bidromiques que pour le régime de Brillouin sauf si s a une des valeurs critiques s_1, s_2, ... ; dans ce cas le champ du régime bidromique correspondant est égal à celui du régime de Brillouin ; laissant de côté cette exception nous pouvons en conclure que *pour un potentiel d'anode déterminé la surface de coupure occupe une position différente suivant le régime qui se produit et pour être plus précis que le nuage électronique est plus étendu en régime bidromique qu'en régime de Brillouin.* En effet, pour une même valeur de b/a les distributions de potentiels en régime de Brillouin et en régime bidromique ont l'allure représentée sur la figure 20 par les arcs OV_0B et OV_1B ; la prolongation de ces courbes par des harmoniques sans charge d'espace jusqu'à $r = c$ donne les arcs BC_0 et BC_1 ; le potentiel d'anode obtenu pour le régime bidromique est plus faible que celui obtenu pour le régime de Brillouin ; si l'on veut ramener le point C_0 en C_1 c'est-à-dire trouver l'allure des phénomènes pour un potentiel d'anode déterminé, l'arc BC_0 est remplacé par l'arc B_0C_1, d'où le résultat annoncé.

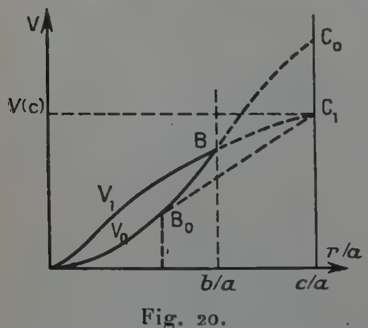


Fig. 20.

Ceci dit, établissons la relation donnant $\frac{b}{a}$ en fonction de $\frac{c}{a}$ et m, entre $r = b$ et $r = c$ on a :

$$V = A\ \text{Log}_e\, r + B \tag{53}$$

$$\frac{dV}{dr} = \frac{A}{r}.$$

Plaçons-nous tout d'abord en régime de Brillouin : entre $r = a$ et $r = b$ on a :

$$V_0 = V^*\left(\frac{r}{a} - \frac{a}{r}\right)^2$$

$$\frac{dV_0}{dr} = \frac{2V^*}{r}\left(\frac{r^2}{a^2} - \frac{a^2}{r^2}\right).$$

Raccordons les deux distributions pour $r = b$ nous obtenons :

$$A = 2V^*\left(\frac{b^2}{a^2} - \frac{a^2}{b^2}\right); \tag{54}$$

or nous avons :

$$V(b) = V^*\left(\frac{b}{a} - \frac{a}{b}\right)^2$$

$$V(c) = mV^*\left(\frac{c}{a} - \frac{a}{c}\right)^2$$

d'où d'après (53) et (54) :

$$V(c) - V(b) - mV^*\left(\frac{c}{a} - \frac{a}{c}\right)^2 - V^*\left(\frac{b}{a} - \frac{a}{b}\right)^2$$
$$= 2V^*\left(\frac{b^2}{a^2} - \frac{a^2}{b^2}\right)(\mathrm{Log}_e\, c - \mathrm{Log}_e\, b)$$

$$\boxed{m\left(\frac{c}{a} - \frac{a}{c}\right)^2 - \left(\frac{b}{a} - \frac{a}{b}\right)^2 = 2\left(\frac{b^2}{a^2} - \frac{a^2}{b^2}\right)\left(\mathrm{Log}_e\frac{c}{a} - \mathrm{Log}_e\frac{b}{a}\right)} \tag{55}$$

Si l'on suppose le nuage en régime bidromique nous pouvons poser pour $r = b$ d'après le théorème de Gauss :

$$\frac{dV_1}{dr} = \frac{Q_1}{Q_0}\frac{dV_0}{dr} = h\left(\frac{b}{a}\right)\frac{dV_0}{dr}$$

la fonction $h\left(\frac{b}{a}\right)$ a été calculée précédemment et est représentée sur la figure 16 ; on peut poursuivre le calcul comme en régime de Brillouin et on obtient finalement :

$$\boxed{m\left(\frac{c}{a} - \frac{a}{c}\right)^2 - \left(\frac{b}{a} - \frac{a}{b}\right)^2 = 2h\left(\frac{b}{a}\right)\left(\frac{b^2}{a^2} - \frac{a^2}{b^2}\right)\left(\mathrm{Log}_e\frac{c}{a} - \mathrm{Log}_e\frac{b}{a}\right)} \tag{56}$$

Les équations (55) et (56) ne peuvent être résolues que numériquement. A titre d'exemple, nous avons représenté sur la figure 21 les valeurs de $\frac{b}{a}$ en fonction de m pour les divers régimes dans le cas où $\frac{c}{a} = 7,5$; pour $m < 0,22$ seul le régime de Brillouin B_0 est possible ; pour $m > 0,4$ les régimes B_0 et B_1 sont possibles ; dans la région

intermédiaire les phénomènes peuvent être plus compliqués car des régimes bidromiques d'ordre supérieur sont également possibles.

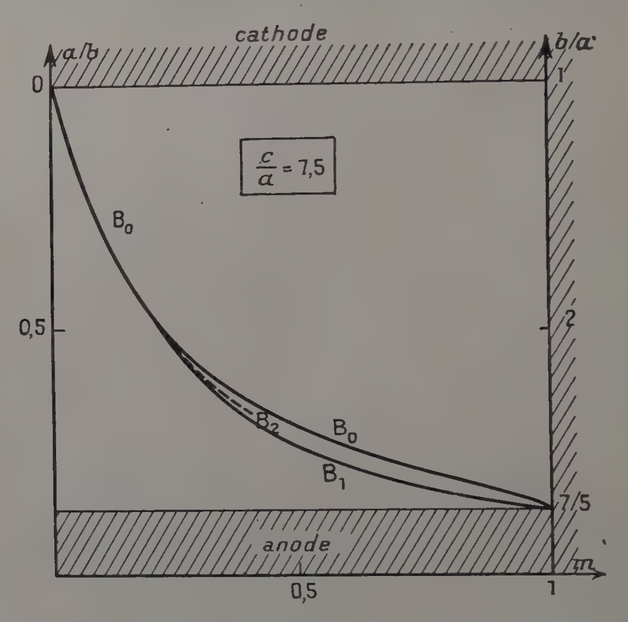


Fig. 21.

10. Passage aux cas-limites du magnétron à cathode filiforme et de la diode sans champ magnétique. — Envisageons maintenant un cas-limite de la théorie : celui ou b/a tend vers l'infini ; pour l'étudier on doit faire tendre le paramètre s vers zéro ; or d'après (20) s varie comme $\Omega^2 a^{4/3}/j^{2/3}$; pour faire tendre s vers zéro, on peut donc supposer que :

a) Ω et j restent finis et a tend vers zéro ; b reste alors fini ; ce cas est celui des magnétrons dans lesquels la cathode est un filament mince ;

b) a et j restent finis et Ω tend vers zéro ; b tend vers l'infini ; l'anode peut être placée à une distance finie et ce cas est celui de la diode cylindrique sans champ magnétique.

Les deux cas ci-dessus sont à la limite décrits par la même fonction y ; en particulier, on peut en conclure que la *distribution de charge dans un magnétron à cathode filiforme diffère très peu de celle d'une diode sans champ magnétique tant qu'on ne s'approche*

pas de la surface de coupure, résultat théorique remarqué par Page et Adams dans un cas particulier $\left(\frac{b}{a} = 125\right)$; la fonction y correspondant à : $s = 0$ doit donc avoir un rapport avec la fonction classique β^2 de Langmuir ; en fait on démontre facilement :

$$y_{s=0} \equiv \beta^{4/3}. \qquad (57)$$

On reconnaît sur la figure 4, l'allure bien connue de la fonction β^2 : y comme β^2 tend vers 1 quand t tend vers l'infini.

Pour étudier de plus près les atmosphères électroniques se rapprochant de ce cas-limite, il nous faut préciser un peu les lois que suit la fonction y quand s est très petit, mais non nul ; nous renvoyons pour ceci le lecteur à l'appendice II de notre thèse de Doctorat (19). Les deux principaux résultats sont les suivants :

a) quand s est faible, la relation entre s et $\frac{b}{a}$ peut s'écrire :

$$\boxed{\frac{9}{4}s^2 = A^2\left(\frac{b}{a}\right)^{-\frac{4}{3}}} \qquad (58)$$

avec $A^2 = 10{,}45$, $A = 3{,}233$;

b) quand s est faible on a sensiblement :

$$y'_0 = B = -1{,}92.$$

Ces deux propriétés permettent de déterminer l'allure des différentes courbes relatives aux diverses grandeurs physiques au voisinage de $\frac{a}{b} = 0$. On trouve que :

$\frac{Q_1}{Q_0} \to 0{,}449$. $\frac{J_1}{j_1} \to 0{,}402$. $\varphi \to 2{,}507$ radians $= 159{,}6$ grades $= 143°40'$.

$\frac{\tau}{\tau^*} \to 4{,}45$. $\frac{J_1}{J_0} \to 0{,}449$. $\frac{W_1}{W_0} \to 0$.

11. Passage au cas-limite du magnétron plan. — Après avoir étudié l'allure des phénomènes quand b/a tend vers ∞ il est logique de chercher ce qui se passe quand b/a tend vers 1. On considère généralement qu'on obtient ainsi le cas du magnétron plan. Or, en toute rigueur, le passage à la limite $\frac{b}{a} = 1$ ne représente le magnétron plan que si on suppose de plus que a tend vers l'infini, la différence $b - a$ tendant vers une limite finie. Nous insistons sur cette difficulté car presque tous les auteurs ont jusqu'à maintenant espéré représenter les cas

pratiques où b/a est voisin de 1 et a fini (fig. 22, I) par l'approximation plane (fig. 22, II) ; méthode qui, évidemment, ne peut être que grossière pour l'étude des magnétrons réels qui fonctionnent en général avec b/a voisin de 2. Mais cette méthode est même radicalement fausse et conduit à des résultats qualitativement inexacts. Elle revient à négliger la force centrifuge dans le mouvement des électrons. On peut facilement voir que ceci est inadmissible dans le cas cylindrique même quand b/a est voisin de 1 ; chaque électron est en effet soumis à une force électrique f_E et à une force magnétique f_H : en régime de Brillouin ces deux forces sont radiales et leur résultante s'oppose à la force centrifuge f_c :

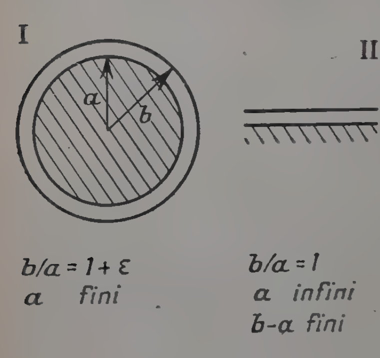


Fig. 22.

$$f_E + f_H = f_c.$$

Au voisinage de la cathode ces trois forces s'annulent, mais on voit facilement que si on pose $\frac{r}{a} = 1 + \varepsilon$, f_E est de l'ordre de ε^2, tandis que f_H est de l'ordre de ε ; par conséquent, à la limite on a $f_H \sim f_c$ et il est inadmissible de négliger f_c devant f_H.

En fait, quand on considère que les deux cas représentés sur la figure 22 sont identiques, on est conduit à un résultat paradoxal : quand $\frac{b}{a} < 2$ nous avons trouvé que tout régime bidromique est impossible; la seule solution consistante des équations de la charge d'espace est celle qui représente le régime de Brillouin ; dans le magnétron plan au contraire une infinité de régimes bidromiques sont possibles ; il y a donc lieu d'étudier de façon précise comment ces deux cas se rejoignent. Nous renvoyons pour ceci le lecteur à l'appendice III de notre thèse de doctorat : on y trouvera une description des propriétés des régimes bidromiques d'ordre n très élevé obtenus quand s tend vers l'infini. Les principaux résultats sont les suivants :

— les régimes B_n présentent $(n - 1)$ anneaux intermédiaires de densité maxima ; donc quand n tend vers l'infini le nombre des anneaux tend vers l'infini, l'intervalle entre eux tendant vers zéro ;

— la distribution de charge d'espace entre deux anneaux consécutifs tend alors vers celle d'un magnétron plan en régime bidromique simple (régime décrit par exemple par Page et Adams (12)) ;

— la surface de coupure tend vers une position-limite définie par une certaine valeur de $\frac{b}{a}$: $\left(\frac{b}{a}\right)_n \to \left(\frac{b}{a}\right)_\infty$;

— la théorie fournit, au moyen d'un calcul d'ailleurs assez pénible, la valeur de $\left(\frac{b}{a}\right)_\infty$; nous avons trouvé $\left(\frac{b}{a}\right)_\infty = 2{,}55$; la méthode très différente exposée par Brillouin et F. Bloch (14) conduit à $\left(\frac{b}{a}\right)_\infty = 2{,}27$; les deux méthodes contiennent des approximations différentes mais assez délicates. Enfin, il semble que les résultats obtenus à ce jour par le calcul numérique direct sont compatibles avec l'une ou l'autre des deux valeurs ci-dessus ;

— le nuage cylindrique correspondant à la valeur critique $\left(\frac{b}{a}\right)_\infty$ est en quelque sorte formé par la juxtaposition d'une infinité de nuages du type magnétron plan. Si a est fini, chacun de ceux-ci n'occupe qu'un intervalle infiniment petit. Mais on peut faire tendre a vers l'infini de telle façon que chacun de ces intervalles devienne fini. Le régime bidromique simple du magnétron plan s'obtient alors en ne conservant de la distribution de charge d'espace que la première période.

IV. — ÉTUDE EXPÉRIMENTALE DU MAGNÉTRON DE HULL

1. Description des tubes employés. — Nous présentons maintenant les résultats d'expériences faites sur des magnétrons de Hull spécialement construits pour se rapprocher des conditions théoriques. Tous ces tubes sont du même modèle représenté sur la figure 23. Les caractéristiques suivantes sont à noter :

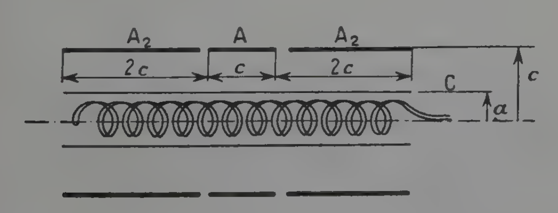


Fig. 23.

— chaque tube comporte une anode centrale A et deux anneaux de garde A_1 et A_2 ; la longueur des anneaux de garde est $2c$ c'est-à-dire égale à leur diamètre ;

— la cathode est à oxydes, à chauffage indirect ; le filament est en double hélice ; ceci a pour but de réduire au maximum le champ

magnétique propre du courant de chauffage ; on peut, au cours des expériences, vérifier que ce champ parasite est négligeable en coupant le courant de chauffage : l'inertie thermique de la cathode est suffisamment grande pour qu'on puisse, dans les vingt secondes qui suivent, poursuivre l'expérience en cours et vérifier que rien n'est changé ;

— les plaques sont en constantan (alliage non magnétique);

— les tubes sont scellés, en ampoule de verre. Les opérations habituelles (montage, pompage, dégazage, activation de la cathode, scellement) ont été effectuées très soigneusement dans un laboratoire d'électronique industriel bien outillé et rompu à ces techniques.

Le tableau ci-dessous donne la liste des différents tubes étudiés et leurs caractéristiques principales ; il y a une certaine incertitude sur le diamètre des cathodes car on ne connaît pas l'épaisseur de la couche d'oxydes ; nous avons admis selon les conseils du constructeur que l'épaisseur de cette couche est de 0,1 mm.

TABLEAU III

N° du tube	$2a$ (mm.)	$2c$ (mm.)	c/a	$I/V^{3/2}$ théorique	$I/V^{3/2}$ expérimental	V_{co}/i_H^2 théorique	V_{co}/i_H^2 expérimental	Observations
1	6,2	30	4,839	19,5 10^{-6}	19,7 10^{-6}	25,5	27	$m_0 = 0,40$?
2	10,2	25	2,451	36,7 »	35 »	15,4	14,6	$m_0 = ?$
3	10,2	16,67	1,634	89,7 »	77 »	3,36	—	pas de transition typique
4	10,2	12,5	1,225	419 »	370 »	0,54	—	
5	8,2	32	3,902	22,4 »	21 »	27,7	27,2	
6	4,2	30	7,143	16,44 »	15,6 »	26,8	28,2	$m_0 = 0,22$
7	—	—	—	—	—	—	—	tube défectueux
8	4,2	30	7,143	16,44 »	—	26,8	27,9	$m_0 = ?$
9	—	—	—	—	—	—	—	tube défectueux
10	6,2	30	4,839	19,5 »	—	25,5	—	tube douteux
11	6,2	30	4,839	19,5 »	—	25,5	—	$m_0 = 0,30$
12	4,2	30	7,143	16,44 »	—	26,8	—	$m_0 = 0,26$
13	4,2	30	7,143	16,44 »	—	26,8	—	$m_0 = 0,23$

2. Description du montage. — Notre étude expérimentale est essentiellement celle de la caractéristique $i_p v_p$ des magnétrons. Le montage généralement utilisé était celui représenté schématiquement sur la

figure 24 ; le courant débité par chaque anode passe dans une résistance de charge ; les trois résistances de charges R_0, R_1, R_2 sont reliés ensemble en un point M qui est mis à la terre ; on crée entre M et la cathode une différence de potentiel variable $V_0 \pm \Delta V \sin \omega t$; R_0, R_1, R_2 sont telles que les chutes de tensions entre leurs deux extrémités soient négligeables devant ΔV (de l'ordre du centième de volt). De cette façon les trois anodes restent pratiquement équipotentielles et leur différence de potentiel v_p avec la cathode balaye l'intervalle $V_0 \pm \Delta V$; V_0 et ΔV sont mesurés avec deux voltmètres non représentés sur la figure. Les plaques X de l'oscillographe cathodique OC enregistrent la partie variable de la tension v_p et les plaques Y la chute ohmique dans les résistances R_0, R_1, R_2, c'est-à-dire le courant

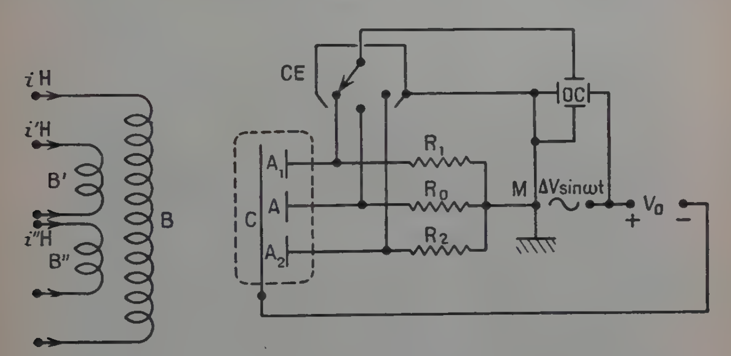


Fig. 24.

débité par chacune des trois anodes ; il est commode d'observer simultanément ces trois courants au moyen d'un commutateur électronique CE ; l'amplification nécessaire (de l'ordre de 1 000) est alors effectuée avant la commutation dans trois amplificateurs identiques et la sortie du commutateur est branchée directement sur les plaques de l'oscillographe. Dans la plupart des expériences le balayage a été fait à la fréquence 50 et les oscillogrammes ont été photographiés avec un temps de pose de 1/50 de seconde. La fréquence de commutation est voisine de 15 000. Le commutateur électronique est parfois nuisible (spot moins fin, nécessité de balayer à une fréquence très inférieure à la fréquence de commutation) ; on peut alors s'en passer en n'observant par exemple que le courant débité sur l'anode centrale.

Le champ magnétique H est créé par un solénoïde B parcouru par un courant i_H ; on a adjoint à ce solénoïde deux couples de bobines de Helmholtz B' et B'' parcourus respectivement par les courants i'_H et i''_H ;

ces bobines fournissent des champs supplémentaires H′ et H″ perpendiculaires à H ; l'ensemble est représenté sur la figure 25. La construction en a été soignée pour qu'on puisse calculer les champs H, H′ et H″ à partir des données géométriques et des valeurs de i^{H}, i'_{H}, i''_{H} :

$$\left.\begin{aligned} H &= (23,725 \pm 0,01) i_{H} \\ H' &= 1,26 i'_{H} \\ H'' &= 1,11 i''_{H} \end{aligned}\right\} \quad (59)$$

Les bobines B et B″ permettent donc de faire varier l'orientation du champ résultant à l'intérieur d'un cône ayant pour axe celui du solé-

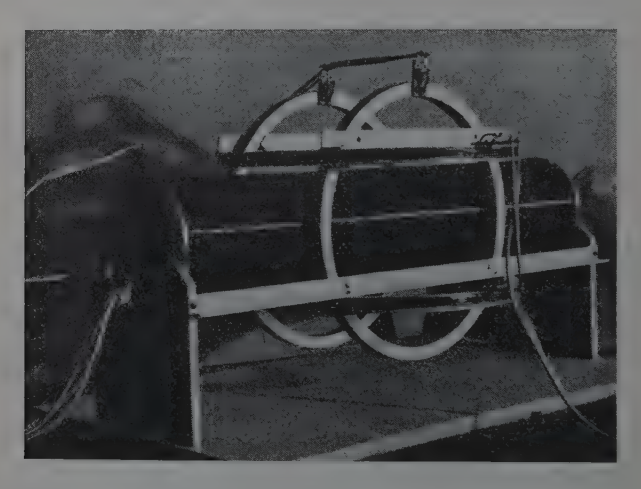


Fig. 25.

noïde B. Les tubes sont montés de façon rigide à l'intérieur du solénoïde ; si leur construction était parfaite leur axe serait parallèle à celui du solénoïde ; en fait, les deux axes font toujours un petit angle en général inférieur à un degré ; les bobines B′ et B″ permettent théoriquement de corriger cet écart ; bien entendu on ne connaît pas *a priori* la position de l'axe du magnétron et ce réglage ne peut être effectué que si on a un moyen de le contrôler ; on verra plus loin comment cela se fait. On peut d'ailleurs remarquer que dans presque toutes les expériences H′ et H″ sont de l'ordre de H/100 et que par suite l'intensité du champ résultant peut être confondue avec H.

3. Fonctionnement en diode. — Sur certains tubes nous avons vérifié la loi en $V^{3/2}$ et comparé la valeur expérimentale de $j/V^{3/2}$ à la valeur théorique calculée à partir de la formule de Langmuir. C'est un

Annales de Physique
12e Série, t. 9 (Mai-Juin 1954).

JEAN-LOUP DELCROIX

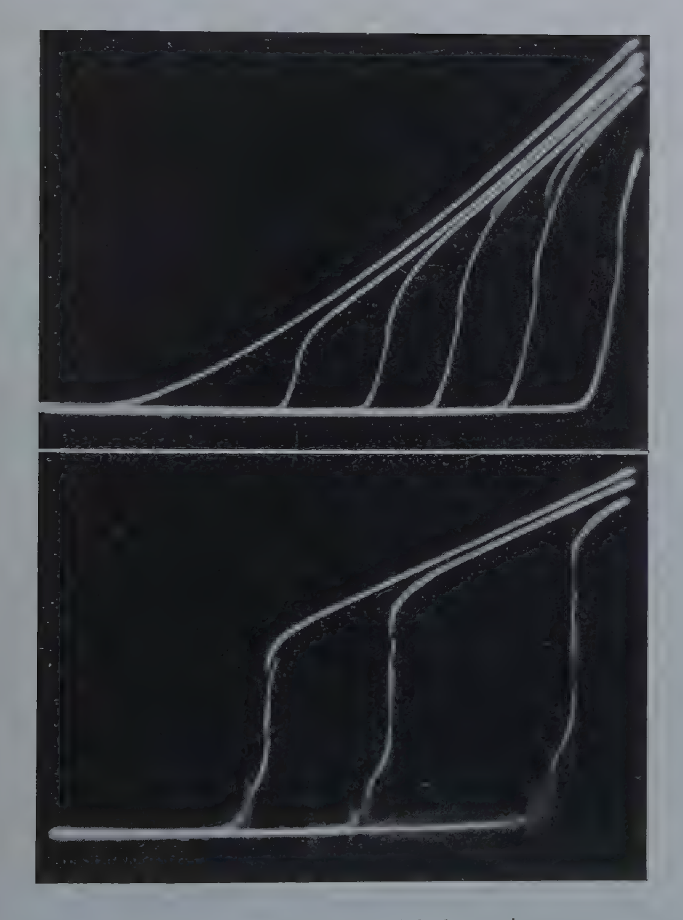


Fig. 26 et 27. — Caractéristiques $i_P v_P$ d'un magnétron pour des valeurs croissantes du champ magnétique.

MASSON ET Cie, ÉDITEURS

moyen très utile pour vérifier que la cathode est en bon état sur toute sa surface. Nous n'avons conservé que les tubes pour lesquels les deux valeurs de $j/V^{3/2}$ différaient de moins de 5 o/o.

4. Etude de la coupure. — Les figures 26 et 27 représentent les caractéristiques $i_p v_p$ d'un des tubes. On a opéré sans commutateur en enregistrant seulement le courant reçu par l'anode centrale ; les différentes courbes ont été obtenues en faisant varier H et photographiées sur une même plaque ; la figure 26 représente les phénomènes pour des valeurs faibles de H depuis la valeur zéro ; la figure 27 représente les phénomènes pour des valeurs plus fortes de H. Les données relatives à ces photos sont précisées dans le tableau IV qui constitue un répertoire des photos. On peut faire les remarques suivantes :

— au-dessus du potentiel de coupure les diverses caractéristiques tendent vers des courbes déduites par translation horizontale de la courbe en $V^{3/2}$ obtenue pour $H = 0$; c'est un résultat théorique bien connu énoncé notamment par Brillouin (14) qui précise de plus que l'écart avec la courbe de Langmuir est proportionnel à H^2 ce qui se vérifie du moins grossièrement ;

— la coupure devient plus raide au fur et à mesure que H croît ce qui est explicable ; quand H est faible, V_{co} l'est aussi, et divers phénomènes parasites peuvent devenir plus importants (champs magnétiques parasites, vitesse initiale des électrons, ...) ;

— toutefois, la coupure n'est jamais aussi simple et brutale qu'on pourrait le prévoir ; elle s'accompagne de phénomènes assez complexes (hystérésis, oscillations de haute fréquence...) ; certains peuvent être liés à l'existence de trois anodes et à des imperfections géométriques ; nous l'ignorons ;

— compte tenu des remarques précédentes, le potentiel de coupure suit assez bien la loi $V_{co}/H^2 = \text{Cte}$ (à 1 ou à 2 o/o près en général) ; les valeurs théoriques et expérimentales de V_{co}/H^2 diffèrent en général de moins de 5 o/o.

5. Etude du courant résiduel. — a) *Complexité des phénomènes.* — C'est une chose bien connue que dans la région de coupure on observe un courant résiduel dont l'explication est très délicate. En fait, quand on explore la caractéristique $i_p v_p$ dans la région de coupure on observe des phénomènes parfois complexes. Les figures 28, 29, 30 en sont des exemples.

L'examen d'un grand nombre d'oscillogrammes de ce genre conduit aux remarques suivantes :

— le courant résiduel croît, en général, avec le potentiel et plus vite que celui-ci ;

TABLEAU IV. — *Répertoire des oscillogrammes.*

N° de fig.	N° de tube	Electrodes	V_0	ΔV	i_H	i'_H	i_H	R_0	R_1	R_2	Δi_p	$\overline{\Delta i_p}$	$\Delta i_p/\overline{\Delta i_p}$	Remarque
26	6	A	80	100	0 1,5 1,8 2 2,2 2,4	0	0	3	0	0	47 10^{-3}			
27	6	A	290	94	2,9 3,2 3,5	0	0	1	0	0	130 10^{-3}			
28	6	A	200	100	5	2,3	0,71	2 000	0	0	50 10^{-6}	9 10^{-3}	7 10^{-4}	
29	5	A	190	100	5	0,6	1,6	10 000	0	0	3,7 10^{-6}	92 10^{-3}	0,4 10^{-4}	
30	8	A	267	100	4,5	0	0	10 000	0	0	13,5 10^{-6}	80 10^{-3}	1,7 10^{-4}	
33 34 35 36 37 38 39	6	A	200	100	5	2,3	2,1 1,4 0,7 0 — 0,7 — 1,4 — 2,1	10 000 » » 5 000 2 000 » 1 000	0	0	4,5 10^{-6} 4,5 10^{-6} 9 10^{-6} 24 10^{-6} 52 10^{-6} 75 10^{-6} 110 10^{-6}	69 10^{-3}	6,5 10^{-4} 6,5 10^{-4} 1,3 10^{-4} 3,5 10^{-4} 7,5 10^{-4} 1,1 10^{-3} 1,6 10^{-3}	$\alpha = 0$ 19′ 38′ 57′ 1°16′ 1°35′ 1°54′
40	12	A_1 A A_2	50	100	4	0,5	0,42	500	100	100	300 10^{-6} 120 10^{-6} 400 10^{-6}	60 10^{-3} 30 10^{-3} 60 10^{-3}	5 10^{-3} 4 10^{-3} 6,7 10^{-3}	
43	13	$A + A_1 + A_2$	102	20	4	0,1	0,8	1 000			—	—		$f =$ 50
44	13	$A + A_1 + A_2$	102	20	4	0,1	0,8	1 000			—	—		$f =$ 1 000
45	13	$A + A_1 + A_2$	102	20	4	0,1	0,8	1 000			—	—		$f =$ 16 000

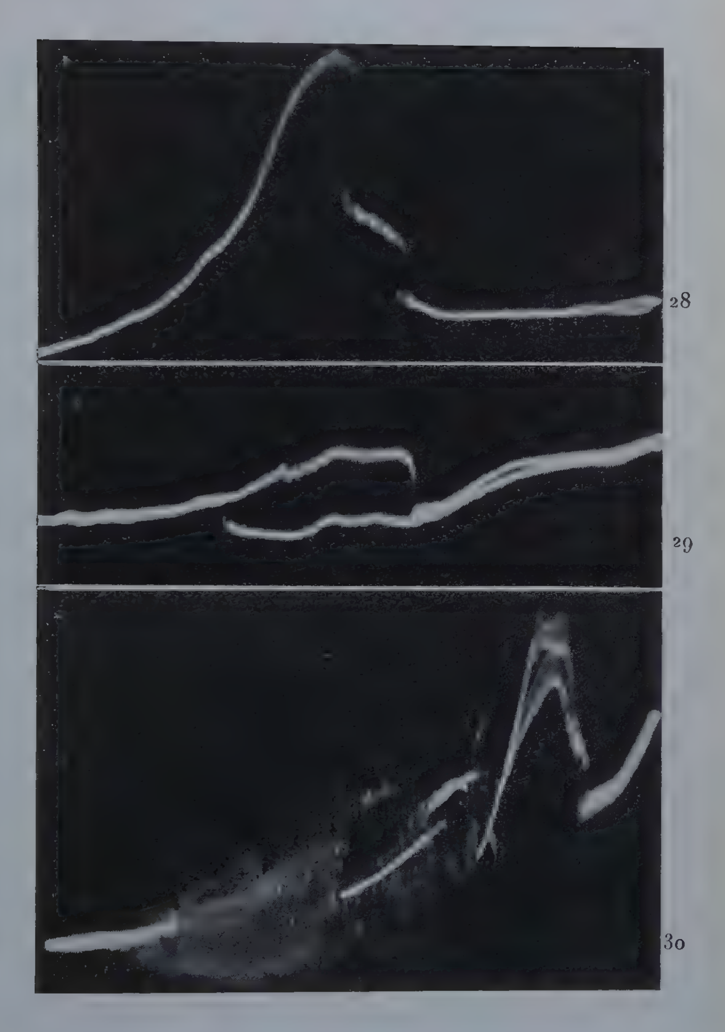


Fig. 28, 29 et 30. — Oscillogrammes du courant résiduel : si on ne prend pas de précaution les phénomènes qu'on observe sont très complexes.

— toutefois il subit des discontinuités pour certaines valeurs de v_p et au voisinage de ces discontinuités on a souvent $di_p/dv_p < 0$ (fig. 28) ;

— les discontinuités se produisent toujours avec une légère hystérésis (fig. 28) ;

— on observe parfois mais rarement des hystérésis bien plus larges (fig. 29) pouvant atteindre la centaine de volts ;

— les oscillogrammes montrent de nombreuses oscillations ; on reconnaît sur certains (fig. 28 et 29) du bruit de fond dont on observe les composantes de basse fréquence et sur d'autres (fig. 30) des oscillations d'un type particulier qui semblent s'analyser comme des suites de transitions entre deux états statiques différents et également stables (ou instables) ;

— l'ordre de grandeur du courant résiduel est très variable quand on ne prend pas de précautions ; dans le tableau IV nous avons indiqué les valeurs de l'amplitude de courant Δi_p (hauteur de l'oscillogramme) effectivement observée et de celle $\overline{\Delta i_p}$ qu'on obtiendrait dans les mêmes conditions d'après la formule de Langmuir si l'on supprimait le champ magnétique. Le calcul du rapport $\Delta i_p/\overline{\Delta i_p}$ est un moyen grossier de comparer le courant résiduel aux courants qui circulent dans le tube ; on obtient des valeurs très variables, d'autant plus petites qu'on est plus loin de la coupure ;

— la densité du courant résiduel est toujours bien plus grande sur les anneaux de garde que sur l'anode centrale : un rapport de densités de l'ordre de 10 est une valeur courante.

b) *La loi* m = Cte. — On peut en faisant varier H (et simultanément V_0) étudier comment varie le potentiel v auquel se produit une certaine discontinuité ; on constate alors que pour les discontinuités les mieux définies v varie comme H^2 ; autrement dit le rapport $m = v/V_{co}$ reste constant. Si l'on se reporte au chapitre III on voit que ceci veut dire que *chaque discontinuité du courant résiduel suivant cette loi se produit quand le rapport* b/a *du nuage électronique atteint une valeur déterminée.*

6. Etude de la première transition. — a) *Description.* — Nous avons constaté sur tous les tubes que nous avons étudiés que le début de la caractéristique donne lieu à des phénomènes relativement simples et reproductibles qui sont représentés sur la figure 31 ; la caractéristique commence par un arc C_0 très régulier et pour une certaine valeur de v_p le courant résiduel tombe brusquement puis recommence à croître le long de l'arc C_1. Parfois la transition se fait en deux étapes comme indiqué sur la figure 32 ; l'oscillogramme de la figure 31 en est un exemple. Ce n'est que sur l'arc C_1 que l'on observe les phéno-

mènes assez compliqués (hystérésis, instabilités...) tels que ceux représentés sur les figures 29 et 30. Cette transition suit toujours très bien la loi $m =$ Cte (avec une précision de l'ordre de 2 à 3 o/o).

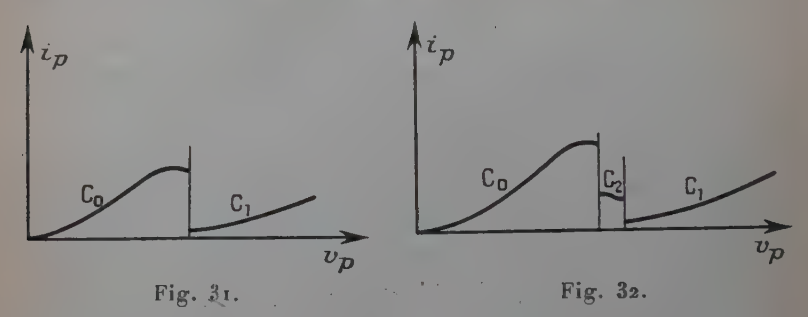


Fig. 31. Fig. 32.

b) *Influence de l'inclinaison du champ magnétique.* — L'expérience montre que dans la région de cette première transition l'allure précise des phénomènes dépend fortement de l'orientation du champ magnétique : un tube étant monté de façon rigide dans le solénoïde et les valeurs de i_H, V_0 et ΔV étant fixées, on constate que l'amplitude de la première transition change beaucoup quand on fait varier i'_H et i''_H ; en suivant le réglage sur l'oscillographe on peut trouver un couple de valeurs de i'_H et i''_H qui rendent le courant résiduel minimum et qui simplifient au maximum l'allure des phénomènes. Nous admettons, ce qui paraît évident, que le champ résultant ($H + H' + H''$ + champ terrestre) est alors parallèle à l'axe du magnétron. Le courant résiduel juste au-dessous de la transition est alors bien plus faible que quand on opère sans faire ce réglage ; on en conclut donc que, au moins *dans cette région de la caractéristique une grande partie du courant résiduel est due à l'inclinaison du champ magnétique sur l'axe du magnétron.* Pour préciser ceci on peut, ayant effectué le réglage précédent, faire varier l'un seulement des deux courants i'_H et i''_H ; on fait alors tourner le champ magnétique dans un plan passant par l'axe du magnétron. Les figures 33 à 39 montrent ce qu'on obtient quand on augmente progressivement l'angle α de l'axe et du champ magnétique ; on y remarque que pour $\alpha = 0$ le courant résiduel semble suivre la loi d'Ohm (au bruit de fond près) et a une valeur très faible ; la résistance du tube est alors d'environ 45 mégohms. C'est l'ordre de grandeur qu'on peut attendre des résistances d'isolement du tube ; autrement dit, *il semble que dans cette région de la caractéristique le courant résiduel se compose d'un courant de fuite ohmique et d'un courant dû à l'inclinaison de l'axe et du champ magnétique ;* de plus, ce deuxième courant semble à peu près

Annales de Physique
12e Série, t. 9 (Mai-Juin 1954).

JEAN-LOUP DELCROIX

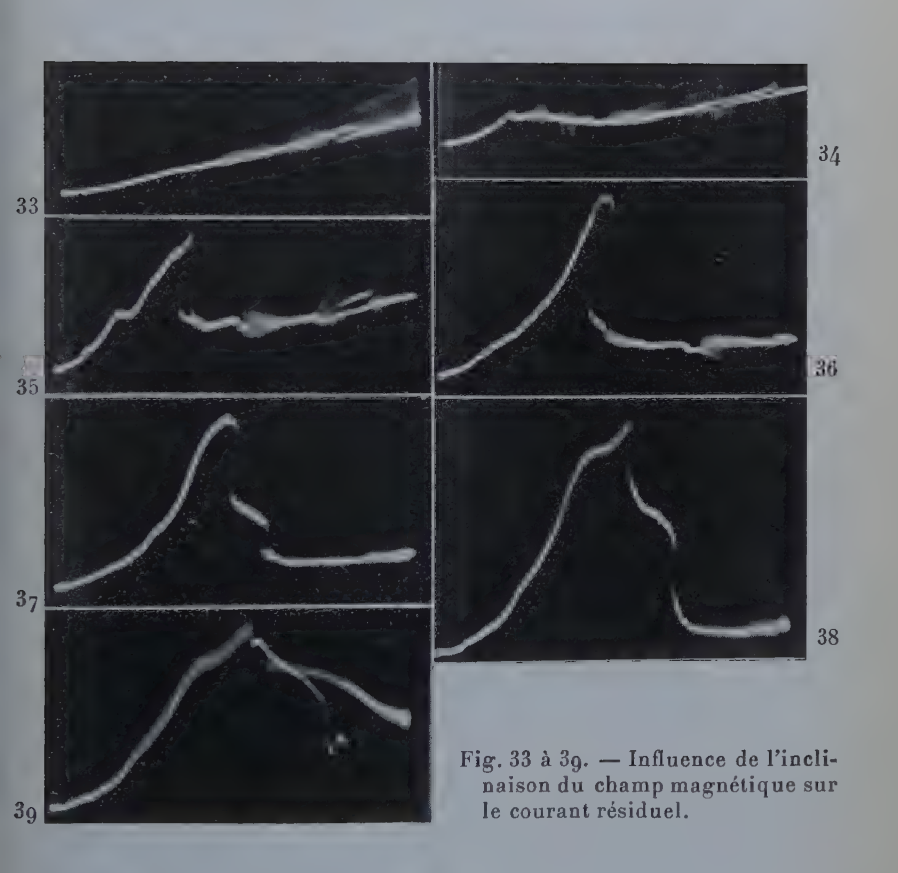


Fig. 33 à 39. — Influence de l'inclinaison du champ magnétique sur le courant résiduel.

MASSON ET Cie, ÉDITEURS

proportionnel à α; une inclinaison d'un degré fait apparaître un courant supplémentaire environ quatre fois supérieur au courant de fuite. *Pour $\alpha = 2^o$ l'état du magnétron paraît entièrement bouleversé.* Si l'on regarde en détail la déformation de la caractéristique au fur et à mesure que α augmente on constate que c'est surtout pour des potentiels inférieurs au potentiel de transition que le tube est sensible de façon critique aux variations de α : l'arc C_0 se déforme très rapidement quand α varie : au contraire l'arc C_1 reste pratiquement inchangé tant que α reste inférieur à 1 degré. L'expérience démontre donc l'existence de deux états de propriétés très différentes. En fait, on observe souvent comme sur la figure 37, un état intermédiaire et parfois deux. Quand α atteint des valeurs de l'ordre de deux degrés des phénomènes d'hystérésis apparaissent souvent; ils sont liés à l'existence de nouveaux états du magnétron : il y a un changement brusque de l'allure des phénomènes quand on passe de la figure 38 à la figure 39; l'arc C_1 a presque complètement disparu et est remplacé par un nouvel arc C'_1. Il est intéressant d'étudier les variations du potentiel pour lequel se produit la première transition ($C_0 \leftrightarrows C_2$) en fonction de α. Il est alors préférable pour déterminer les potentiels de transition de manière plus sûre de les relever sur un oscillogramme où l'on a observé en même temps le courant sur les trois anodes tel que celui de la figure 40; l'emploi du commutateur nuit à l'observation des détails (tels que les états intermédiaires) mais le rapprochement des trois courbes rend la lecture des tensions plus sûre et permet de vérifier le bon fonctionnement du tube. Il est commode de caractériser la position de la transition par la valeur du rapport $m = v/V_{co}$ et de tracer la courbe donnant m en fonction de α; on obtient en général une courbe assez symétrique ayant l'allure représentée sur la figure 41; sa partie centrale est assez mal déterminée (le courant résiduel est très faible dans cette région) mais l'indétermination qui en résulte sur l'ordonnée m_0 du sommet est assez faible (2 ou 3 o/o); or m_0 est le résultat le plus intéressant.



Fig. 40.

c) *Durée de la transition.* — Pour mesurer grossièrement la durée de la transition, nous avons réuni ensemble les trois anodes, placé sur le culot une résistance de charge unique et relié ses bornes aux bornes d'entrée de l'oscillographe par un câble coaxial ; nous avons alors exploré un tout petit intervalle $V_0 - \Delta V$, $V_0 + \Delta V$ contenant la transition. Si l'on fonctionne en « Lissajous » comme nous le faisons d'habitude, on observe un cycle très étroit (cf. fig. 42) ; il est plus

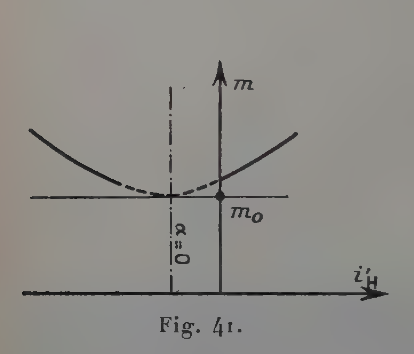


Fig. 41.

Fig. 42.

commode d'utiliser alors pour l'observation le balayage de l'oscillographe ; on obtient alors un oscillogramme crénelé ; les créneaux sont très nets si le temps de transition est court devant la période de balayage ; mais quand on raccourcit cette période on s'aperçoit que la transition n'est pas instantanée et on peut évaluer sa durée ; les figures 43, 44, 45 représentent la même transition mais avec une fréquence de balayage de plus en plus élevée. Sur la dernière on peut évaluer la durée de la transition τ_0 :

Fig. 43.

Fig. 44.

$$2\mu \text{ sec.} < \tau_0 < 4\mu \text{ sec.}$$

Fig. 45.

On peut se demander si ces temps ne sont pas dus au circuit et à l'oscillographe ; pour le voir nous avons, sans rien changer au circuit, remplacé le tube par un générateur de signaux rectangulaires ; on s'aperçoit alors facilement que le temps de montée de l'ensemble circuit, oscillographe est nettement inférieur à la microseconde ; τ_0 représente donc bien la durée de la transition elle-même. Dans certains cas, on constate que la transition est plus rapide dans un sens que dans l'autre.

7. Discussion et interprétation des résultats. — Les expériences qui précèdent mettent en évidence plusieurs états du magnétron doués de propriétés différentes ; le plus simple est celui que l'on obtient pour de faibles valeurs de v_p ; cet état C_0 est caractérisé par une très forte sensibilité à l'inclinaison du champ magnétique H : des variations de cette inclinaison de l'ordre de 2 à 3 minutes ont sur lui une action décelable. Il est logique d'assimiler ce régime au régime de Brillouin ; en effet, un champ H incliné produit sur les électrons une force parallèle à l'axe ; si l'inclinaison est faible cette force est faible, elle ne peut avoir une influence notable que si son effet dure sur chaque électron pendant un intervalle de temps assez long ; seul le régime de Brillouin remplit cette condition. *La première transition correspond donc fort probablement à la disparition du régime de Brillouin et à la formation d'un régime bidromique.* Le régime C_1 peu sensible à l'inclinaison du champ magnétique serait donc le régime bidromique simple B_1 et le régime intermédiaire C_2 serait le régime bidromique B_2. Il est intéressant de comparer la durée de la transition à la période de révolution des électrons en régime de Brillouin ; dans l'expérience citée au paragraphe précédent, on avait :

période de révolution : 0,01 μ sec.
durée de transition : 3 μ sec.

La transition est donc relativement lente comparée aux mouvements individuels des électrons, mais ceci ne nous paraît pas une objection à notre interprétation car l'évolution rapide du plasma d'un état statique vers un autre doit s'accompagner d'oscillations qui peuvent n'être que peu amorties.

Revenons maintenant sur la valeur $m_0 = v/V_{c0}$ caractéristique de la transition ; les valeurs trouvées expérimentalement ont été indiquées dans le tableau III ; nous y avons encadré les résultats les mieux établis ; on remarque donc que :

a) *la transition est bien reproductible sur les tubes de rapport* c/a $= 7,14$;

b) *la transition est observable, mais moins bien reproductible sur les tubes de rapport* c/a $= 4,84$;

c) *les tubes de rapport* c/a < 4 *ne donnent pas de résultats très nets.*

Les résultats que nous avons énoncés au paragraphe 6 se rapportaient en fait aux deux premiers types de tubes ; on voit clairement sur les oscillogrammes correspondants que le courant résiduel a deux causes très différentes, l'une est l'inclinaison du champ, elle se manifeste quand le magnétron est en régime de Brillouin, l'autre nous est inconnue, mais elle se manifeste surtout quand on approche de la coupure ; on détecte facilement dans cette région des oscillations de

haute fréquence. Sur les tubes de rapport 7,14, les deux phénomènes sont bien separés et correspondent à deux régions distinctes de la caractéristique. En effet, comme nous allons le voir, il y a tout lieu de penser que la transition se produit quand le rapport $b/a = 2$; c'est-à-dire à de faibles valeurs de m. Pour les tubes de rapport 4,84 les deux zones sont déjà moins bien séparées. Enfin, pour les tubes de rapport $c/a < 4$, b/a est égal à 2 pour $m > 0{,}5$ et les deux zones se recouvrent : les phénomènes sont alors plus complexes et notre méthode ne fournit pas de résultats très nets.

En définitive, nous pouvons, en faisant la moyenne des résultats du tableau III conserver les résultats suivants :

$$m_0 = 0{,}24 \quad \text{pour} \quad c/a = 7{,}14$$
$$m_0 = 0{,}35 \quad \text{pour} \quad c/a = 4{,}84.$$

Nous allons voir que ces valeurs se relient à la théorie présentée au chapitre III ; nous y avons vu que pour $b/a < 2$ le régime de Brillouin est le seul possible ; pour $b/a > 2$ un ou plusieurs régimes bidromiques sont également possibles ; or nous avons donné (III, 9) le moyen de calculer b/a en fonction de m pour un tube de valeur c/a donnée : le résultat est fourni par l'équation (55) en régime de Brillouin et par l'équation (56) en régime bidromique ; ces deux équations sont d'ailleurs identiques pour $b/a = 2$ car on a alors $h\left(\frac{b}{a}\right) = 1$. Nous pouvons donc établir un diagramme $\left(\frac{c}{a}, m\right)$ pour repérer les états des divers tubes et tracer dessus la courbe $b/a = 2$ (fig. 46). Si

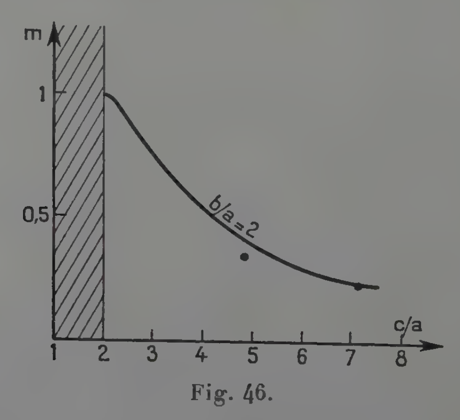


Fig. 46.

on reporte sur ce diagramme les valeurs expérimentales trouvées pour m_0 on remarque qu'elles se placent assez bien sur la courbe $b/a = 2$; d'où la conclusion suivante : *toutes les fois qu'un régime bidromique est possible il s'établit plutôt que le régime de Bril-*

louin ; le régime de Brillouin se produit quand il est le seul possible.

Pour terminer cette discussion, nous pouvons rappeler les résultats théoriques suivants relatifs à la transmission $B_0 \rightleftarrows B_1$ quand elle se produit *pour* b/a = 2 :

— *la position de la surface de coupure est la même pour les deux régimes ;*

— *la charge d'espace totale est la même pour les deux régimes ;*

— *l'énergie cinétique totale du nuage est plus grande dans l'état* B_1 *que dans l'état* B_0 (la différence est d'environ 20 o/o).

On en conclut donc que la plus grande stabilité du régime B_1 ne s'explique pas par des raisons énergétiques : on peut toutefois remarquer que pour des tensions légèrement supérieures à la tension de transition on a toujours :

$$W_1 > W_0$$

mais on a :

$$Q_1 < Q_0.$$

V. — THÉORIE DES AUTRES TYPES DE MAGNÉTRONS (1)

1. Equations générales des charges d'espace du type magnétron. — Avant d'aborder les divers autres modèles que nous avons annoncés au chapitre II, nous pouvons étudier le cas général : les charges d'espaces du type magnétron peuvent être rapportées à un système de coordonnées curvilignes u_1, u_2, u_3 ; les lignes u_1 sont les lignes de force du champ électrique et les lignes u_2 celles du champ magnétique ; les lignes u_3 peuvent, par analogie avec le cas de Hull être appelées lignes de Brillouin. Les éléments de longueurs dans ces trois directions sont :

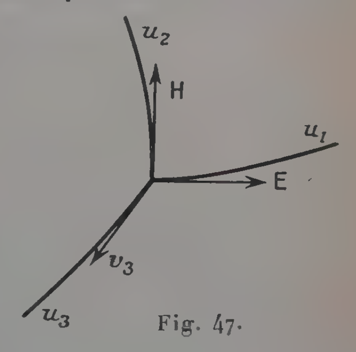


Fig. 47.

$$ds_1 = h_1 du_1 \qquad ds_2 = h_2 du_2 \qquad ds_3 = h_3 du_3. \tag{60}$$

Les surfaces u_1 = Cte sont les équipotentielles du champ électrique, l'une d'entre elles est la cathode d'équation :

$$u_1 = a. \tag{61}$$

(1) Dans ce chapitre les formules sont écrites en u. e. m.

Si nous négligeons le champ magnétique dû aux électrons le champ magnétique dérive lui aussi d'un potentiel W ; les équipotentielles sont les surfaces $u_2 = \text{Cte}$ et l'on a la relation :

$$H = -\frac{1}{h}\frac{dW}{du_2}. \tag{62}$$

Les équations de la charge d'espace s'écrivent :

$$\boxed{\begin{aligned} \tfrac{1}{2}mv^2 &= eV \\ \text{rot}\, \overrightarrow{mv} &= e\overrightarrow{H} \\ \text{div}\, \overrightarrow{\rho v} &= 0 \\ \Delta V &= \frac{4\pi\rho}{\varepsilon_0} \end{aligned}}$$

(63), (64) : équations dynamiques

(65), (66) : équations électriques

L'équation générale (64) est valable pour tout faisceau d'électrons émis sans vitesse initiale à partir d'une cathode sur laquelle il n'y a pas de champ magnétique normal (cf. par exemple Gabor (15)). Sous forme explicite les équations de la charge d'espace s'écrivent :

$$\frac{1}{2}m(v_1^2 + v_2^2 + v_3^2) = eV \tag{67}$$

$$\frac{\partial}{\partial u_2}(h_3 m v_3) - \frac{\partial}{\partial u_3}(h_2 m v_2) = 0 \tag{68}$$

$$\frac{1}{h_3 h_1}\frac{\partial}{\partial u_3}(h_1 m v_1) - \frac{\partial}{\partial u_1}(h_3 m v_3) = eH \tag{69}$$

$$\frac{\partial}{\partial u_1}(h_2 m v_2) - \frac{\partial}{\partial u_2}(h_1 m v_1) = 0 \tag{70}$$

$$\frac{\partial}{\partial u_1}(h_2 h_3 \rho v_1) + \frac{\partial}{\partial u_2}(h_3 h_1 \rho v_2) + \frac{\partial}{\partial u_3}(h_1 h_2 \rho v_3) = 0 \tag{71}$$

$$\frac{1}{h_1 h_2 h_3}\frac{\partial}{\partial u_1}\left(\frac{h_2 h_3}{h_1}\frac{dV}{du_1}\right) = \frac{4\pi\rho}{\varepsilon_0}. \tag{72}$$

On pourrait se proposer d'éliminer v_1, v_2 et v_3 entre les quatre équations dynamiques afin d'obtenir une relation entre V, H et les coordonnées (relation de coupure) ; l'opération ne réussit pas en général car les équations (68), (69) et (70) ne s'intègrent pas. *Nous allons plutôt rechercher dans quelles conditions il existe un régime singulier de Brillouin* c'est-à-dire dans lequel on a en tous points :

$$v_1 = v_2 = 0.$$

Dans ce cas les équations s'écrivent :

$$\frac{1}{2} m v_3^2 = eV \tag{73}$$

$$\frac{\partial}{\partial u_2}(h_3 m v_3) = 0 \tag{74}$$

$$\frac{\partial}{\partial u_1}(h_3 m v_3) = -\, e h_3 h_1 H \tag{75}$$

$$\frac{\partial}{\partial u_3}(h_1 h_2 \rho v_3) = 0 \tag{76}$$

$$\frac{\partial}{\partial u_1}\left(\frac{h_2 h_3}{h_1}\frac{dV}{du_1}\right) = \frac{4\pi\rho}{\varepsilon_0}. \tag{77}$$

L'équation (75) peut alors s'intégrer : on obtient, compte tenu de la condition $v_3 = 0$ pour $u_1 = a$:

$$h_3 m v_3 = -\int_a^{u_1} e h_3 h_1 H du_1$$

ou :

$$\boxed{(2meV)^{1/2} = -\frac{1}{h_3}\int_a^{u_1} e h_3 h_1 H du_1} \tag{78}$$

Pour que cette formule ait un sens il faut que le deuxième membre soit fonction de u_1 seulement. Or la formule (74) nous impose la condition :

$$\boxed{\frac{\partial h_3}{\partial u_2} = 0} \tag{79}$$

Nous pouvons supposer de plus que l'on a :

$$\boxed{\frac{\partial h_3}{\partial u_1} = 0 \qquad \text{ou} \qquad \frac{\partial h_3}{\partial u_3} = 0} \tag{80}$$

Dans les deux cas (78) aura un sens si :

$$\boxed{h_1 H = f(u_1)} \tag{81}$$

Mais nous devons avoir par ailleurs d'après (62) :

$$\boxed{h_2 H = g(u_2)} \tag{82}$$

Il est facile de voir que ces deux dernières équations imposent à h_1, h_2 et H deux conditions supplémentaires qui s'écrivent :

$$\frac{\partial h_1}{\partial u_2}\frac{\partial H}{\partial u_3} - \frac{\partial h_1}{\partial u_3}\frac{\partial H}{\partial u_2} = 0 \tag{83}$$

$$\frac{\partial h_2}{\partial u_1}\frac{\partial H}{\partial u_3} - \frac{\partial h_2}{\partial u_3}\frac{\partial H}{\partial u_1} = 0. \tag{84}$$

En résumé, nous avons obtenu les 4 conditions (79), (80), (83), (84) comme conditions nécessaires de l'existence d'un régime de Brillouin. Comme nous l'avons dit plus haut, il est très difficile d'énoncer des règles d'existence pour les régimes bidromiques. Nous allons donc étudier pour terminer trois cas particuliers.

2. Théorie du magnétron de Hull inversé. — a) *Intégration de l'équation fondamentale.* — Il y a très peu de choses à changer dans la théorie du magnétron classique pour étudier le modèle inversé. Nous appelons toujours a le rayon de la cathode, b celui de la surface de coupure et c celui de l'anode ; on a maintenant en régime de coupure :

$$a > b > c.$$

Dans un régime monodromique on doit donc supposer $\dot{r} < 0$; les équations (1), (2) et (3) sont inchangées tandis que (4) s'écrit :

$$r\dot{r}\rho = -j/2\pi \tag{85}$$

si on suppose toujours $j > 0$; les équations qui suivent sont inchangées ; on peut encore introduire la fonction V par l'équation (10) mais on a maintenant :

$$\dot{r} = -U^{1/2}. \tag{86}$$

Les deux changements de signe introduits dans les équations (85) et (86) se compensent quand on écrit l'équation différentielle en U ; en définitive, *on est ramené à la même équation fondamentale* (19) ; avec les mêmes conditions aux limites. Mais on étudie cette fois ses intégrales pour des valeurs négatives de t. Nous avons appliqué les mêmes méthodes que précédemment et obtenu le réseau d'intégrales représentées sur la figure 48. Les figures 49 et 50 représentent les deux principaux résultats intéressants :

la relation entre s et b/a (fig. 49) ;

la relation entre y' et b/a (fig. 50).

Les phénomènes sont beaucoup plus simples que dans le type direct : quand $\frac{9}{4}s^2$ varie de 0 à ∞, b/a varie régulièrement de 0 à 1 ; autrement dit, *pour toute valeur de* b/a *il peut exister un régime bidromique et un seul.*

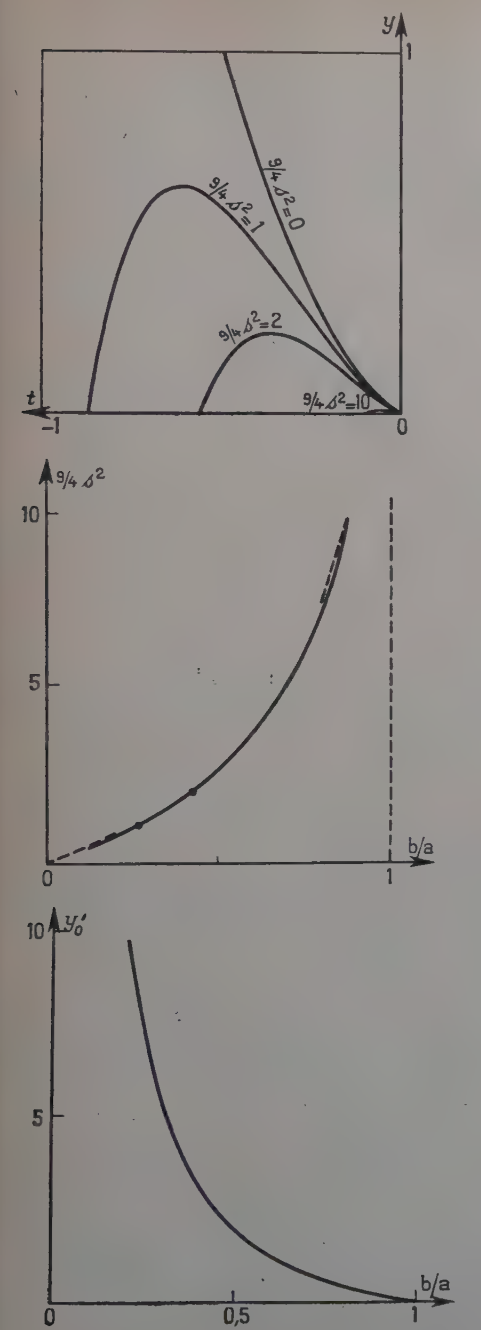


Fig. 48.

Fig. 49.

Fig. 50.

b) *Propriétés physiques des divers régimes.* — Toutes les formules données au chapitre III (§ 6 et 7) peuvent s'appliquer au type inversé si on introduit, quand il y a lieu, les valeurs de s et de y' représentées sur les figures 49 et 50. La figure 51 indique à titre d'exemple le résultat obtenu en comparant les charges d'espace totales de deux nuages ayant même valeur de a, b/a, et Ω, mais étant, l'un en régime de Brillouin et l'autre en régime bidromique. Enfin,

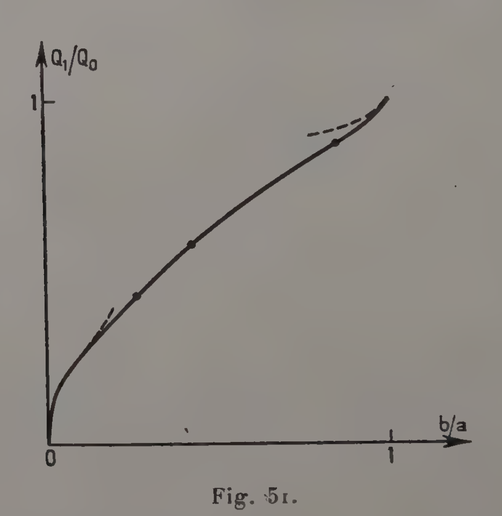


Fig. 51.

il est évident que les lois de similitudes énoncées précédemment (III, 8) sont valables pour le type inversé.

c) *Passages aux cas-limites* $b/a = 0$ *et* $b/a = 1$. On peut préciser l'allure des phénomènes pour des valeurs de b/a voisines de 0 ou 1.

Pour $b/a \sim 0$ le calcul est effectué dans l'appendice IV de notre thèse de doctorat et fournit les relations :

$$\frac{9}{4}s^2 = \left(6A' \operatorname{Log}_e \frac{b}{a} + B'\right)\left(\frac{b}{a}\right)^2. \tag{87}$$

$$y'_0 \sim 2A\left(\frac{a}{b}\right)^2 \operatorname{Log}_e \left(\frac{b}{a}\right) \tag{88}$$

$$A' = -1{,}8204 \tag{89}$$

$$B' = 0{,}42058. \tag{90}$$

Pour $b/a \sim 1$ le calcul est analogue à celui fait pour le type direct, mais il montre alors que le régime bidromique tend vers un régime bidromique de magnétron plan infiniment mince ; les complications

signalées pour le type direct ne se produisent pas ; les calculs conduisent alors aux formules :

$$\frac{9}{4}s^2 \sim \left(\frac{3\pi}{2\,\mathrm{Log}\,\frac{b}{a}}\right)^{2/3} \tag{91}$$

$$y'_0 = \left(\frac{29}{8}\right)^{1/2} \pi^{-1/3}\left(\frac{2}{3}\,\mathrm{Log}\,\frac{a}{b}\right)^{5/6}. \tag{92}$$

3. Théorie du magnétron à champ circulaire. — a) *Equations générales.* — Soit $H = H_\theta = \frac{A}{r}$ le champ magnétique ; les équations de la charge d'espace s'écrivent pour un régime monodromique :

$$v_r^2 + v_z^2 = \frac{2e}{m}V \tag{93}$$

$$m\frac{dv_z}{dr} = -e\frac{A}{r} \tag{94}$$

$$2\pi r \rho v_r = j \tag{95}$$

$$\frac{1}{r}\frac{d}{dr}\left(r\frac{dV}{dr}\right) = \frac{4\pi\rho}{\varepsilon_0}. \tag{96}$$

Il est en effet facile de voir que les électrons circulent dans les plans méridiens ; nous avons donc fait dans les équations générales du paragraphe 1 : $u_1 = r$, $u_2 = \theta$, $u_3 = z$, $v_\theta = 0$, $\frac{\partial}{\partial\theta} = \frac{\partial}{\partial z} = 0$. L'équation (94) s'intègre pour donner :

$$v_z = -\frac{Ae}{m}\,\mathrm{Log}\left(\frac{r}{a}\right). \tag{97}$$

En reportant cette expression dans (93) on obtient la condition de coupure :

$$V \geqslant \frac{A^2e}{2m}\,\mathrm{Log}^2\left(\frac{r}{a}\right). \tag{98}$$

Le régime de Brillouin s'obtient à la limite quand (98) est une *égalité* ; dans ce régime on a $v_r = 0$, les trajectoires sont des droites parallèles à l'axe. Laissons de côté cette solution singulière et posons :

$$U = v_r^2 = \frac{2e}{m}V - \left[\frac{Ae}{m}\,\mathrm{Log}\left(\frac{r}{a}\right)\right]^2 \tag{99}$$

$$r = a\mathrm{e}^x \tag{100}$$

d'où :

$$\frac{2e}{m}V = U + \frac{A^2e^2}{m^2}x^2$$

l'équation (96) s'écrit :

$$\frac{1}{r^2}\frac{d^2V}{dx^2} = \frac{4\pi\rho}{\varepsilon_0}$$

ou :

$$\frac{d^2U}{dx^2} + 2\frac{A^2e^2}{m^2} = \frac{2e}{m}\frac{4\pi\rho}{\varepsilon_0}r^2$$

soit, compte tenu de (95) :

$$\frac{d^2U}{dx^2} = \left(4\frac{e}{m}\frac{j}{\varepsilon_0}a\right)e^x U^{-1/2} - \frac{2A^2e^2}{m^2}.$$

Posons enfin :

$$U = ky \qquad (101)$$

avec :

$$k = \left(4\frac{e}{m}\frac{j}{\varepsilon_0}a\right)^{2/3} \qquad (102)$$

nous obtenons :

$$\boxed{\frac{d^2y}{dx^2} = \frac{e^x}{\sqrt{y}} - \lambda^2} \qquad (103)$$

$$\boxed{\lambda^2 = \frac{2A^2e^2}{m^2}\left(\frac{4e}{m}\frac{j}{\varepsilon_0}a\right)^{-2/3}} \qquad (104)$$

Le calcul est très analogue à celui fait pour le magnétron de Hull ; nous obtenons encore une équation dépendant du seul paramètre λ^2 ; il existe donc des règles de similitude.

b) *Théorie du type direct* ($x > 0$). — Le réseau des intégrales obtenues pour $x > 0$ est représenté sur la figure 52.

On peut faire les remarques suivantes :

1° y ne s'annule jamais ailleurs qu'à l'origine et ce, quel que soit λ ; ceci est apparent sur la figure, et on peut le démontrer rigoureusement. Autrement dit les *régimes bidromiques sont toujours impossibles ; le seul régime de coupure possible est le régime de Brillouin et ce, pour toute valeur de* b/a ;

2° le réseau présente une allure très complexe car les diverses courbes se coupent ; nous avons tracé sur la figure 52 les arcs E_1, E_2, E_3, E_4 qui sont des enveloppes des courbes du réseau ; la considération de ces courbes est très intéressante car elles déterminent des régions dans lesquelles le nombre des intégrales passant par un même point, est constant. Quand ce nombre est supérieur à un, on en conclut qu'il *existe plusieurs régimes monodromiques distincts correspondant à des conditions expérimentales données.* En réalité, les données expérimentales sont A, V et x et il est facile de voir que

Fig. 52.

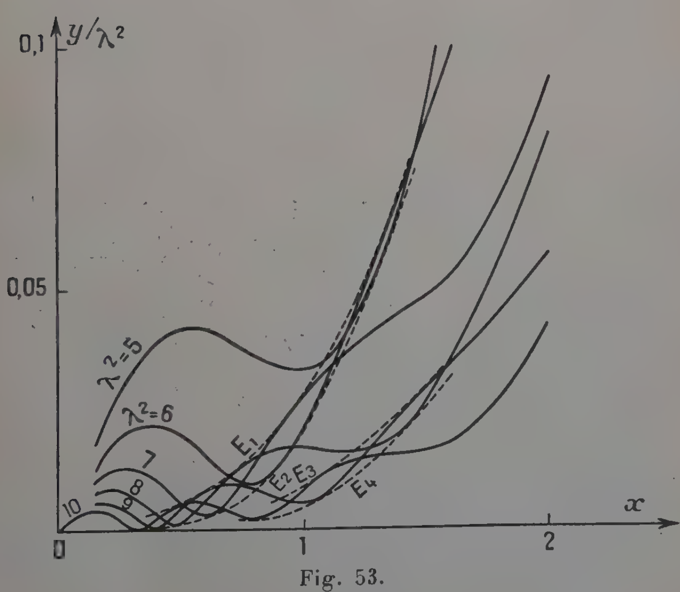


Fig. 53.

le réseau de la figure 52 est inadapté à cette discussion ; en effet, on a d'après les formules (99) à (103) :

$$\frac{2e}{m} \mathrm{V} = \frac{2\mathrm{A}^2 e^2}{m^2} \left(\frac{y}{\lambda^2} + \frac{x^2}{2} \right). \tag{106}$$

Par conséquent se donner A, x et V revient à se donner **A**, x et $\frac{y}{\lambda^2}$; nous devons construire le réseau des intégrales en portant en ordonnée y/λ^2 et non pas y ; c'est ce qui est fait sur la figure 53 ; on y voit

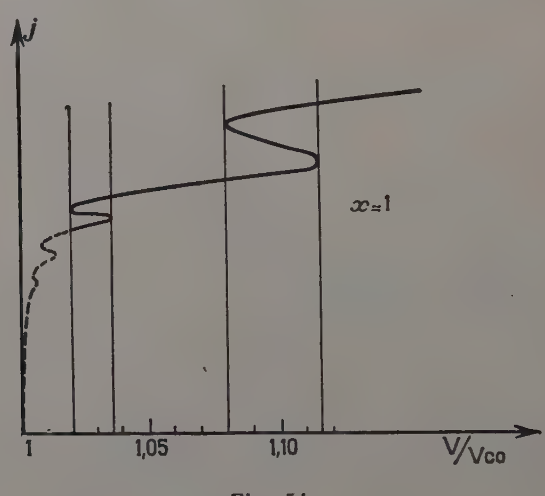


Fig. 54.

que le changement d'ordonnées n'a pas affecté beaucoup la nature des conclusions et nous pouvons préciser :

— dans le domaine situé au-dessus de E_1 il n'y a qu'un seul régime monodromique possible ;

— dans le domaine compris entre E_1 et E_2 il y a trois régimes monodromiques possibles correspondant à des valeurs différentes de λ^2, c'est-à-dire à des valeurs différentes du courant j ;

— dans le domaine compris entre E_2 et E_3 il n'y a à nouveau qu'un seul régime monodromique possible ;

— dans le domaine compris entre E_3 et E_4 il y a trois régimes monodromiques possibles ;

— il est probable que les courbes E_1 et E_2 d'une part, E_3 et E_4 d'autre part, se rencontrent du côté droit de la figure si bien que les

régions à trois régimes disparaissent quand x est assez grand ; il est également probable que le domaine compris en dessous de E_4 comporte une série de régions où l'on a alternativement un et trois régimes possibles ; mais nos calculs numériques n'ont pas été assez développés pour permettre de préciser ces deux points.

Nous pouvons pour terminer donner l'allure de la caractéristique $i_p v_p$ dans la région de débit ; la figure 54 représente ce qu'on a obtenu dans un cas typique $\left(\frac{c}{a} = 2{,}72\right)$; on a supposé pour l'obtenir qu'on se déplaçait sur la droite $x = 1$ du réseau de la figure 53 et utilisé les deux formules pratiques :

$$\frac{V}{V_{co}} = 1 + \frac{2}{x^2}\frac{y}{\lambda^2}$$

$$j \sim (\lambda^2)^{-2/3}.$$

c) *Théorie du type inversé.* — Le type inversé ($x < 0$) donne des résultats beaucoup plus simples ; le réseau d'intégrales est représenté sur la figure 55.

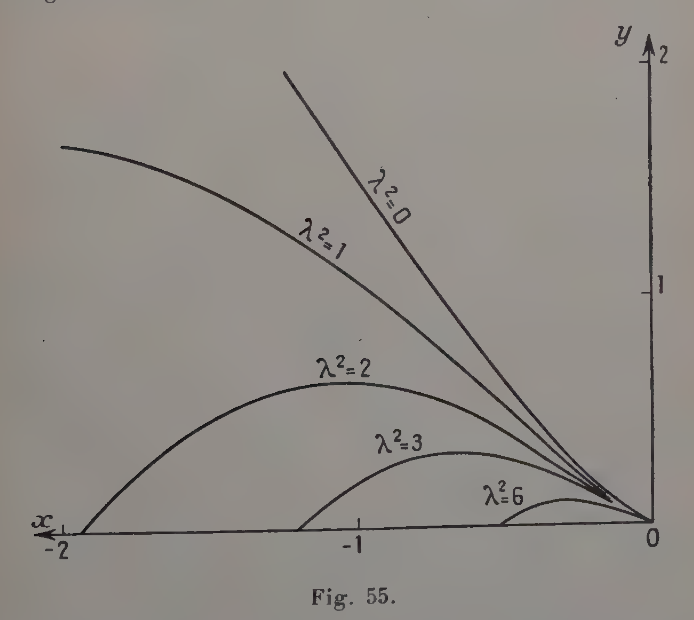


Fig. 55.

On y remarque que y a un zéro fini négatif x_0 pour toute valeur de λ^2 et que $b/a = e^{x_0}$ varie régulièrement de 0 à 1 quand λ^2 varie de 0

à ∞ (fig. 56) : *il existe un régime bidromique pour toute valeur de* b/a *; il n'y a pas d'ailleurs de multiples déterminations en régime de débit.*

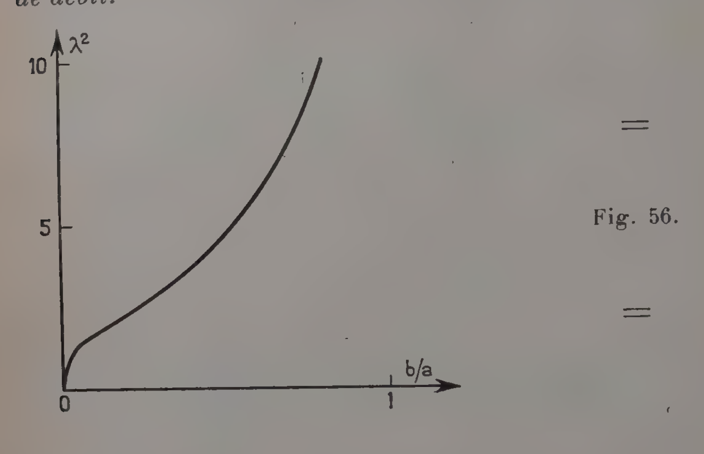


Fig. 56.

VI. — CONCLUSION

Nous pouvons résumer les résultats théoriques obtenus sur les régimes de coupure pour les divers types de magnétrons dans le tableau ci-dessous :

Régimes de coupure théoriquement possibles.

<table>
<tr><th colspan="2"></th><th>Régime de Brillouin</th><th>Un régime bidromique</th><th>Plusieurs régimes bidromiques</th></tr>
<tr><td rowspan="2">Magnétron de Hull</td><td>direct</td><td rowspan="4">Quel que soit b/a</td><td>$2,9 < \frac{b}{a}$</td><td>$2 < \frac{b}{a} < 2,9$</td></tr>
<tr><td>inversé</td><td>$0 < \frac{b}{a} < 1$</td><td></td></tr>
<tr><td rowspan="2">Magnétron à champ circulaire</td><td>direct</td><td></td><td></td></tr>
<tr><td>inversé</td><td>$0 < \frac{b}{a} < 1$</td><td></td></tr>
</table>

Nous avons donc toujours trouvé un régime de Brillouin ; il est d'ailleurs facile de vérifier que les conditions générales que nous avons données pour l'existence d'un tel régime sont satisfaites par les quatre types de magnétrons étudiés. En ce qui concerne les régimes bidromiques, nous avons trouvé des résultats très divers : l'existence de régimes de ce type, leur nombre dépendent du modèle de magnétron considéré.

Quand plusieurs régimes sont possibles on peut se demander quel est celui qui s'établit; c'était la question que nous avions posée au début de ce travail. Notre etude expérimentale du magnétron de Hull nous a fourni pour ce modèle les deux réponses suivantes :

— *le régime de Brillouin s'établit effectivement quand aucun régime bidromique n'est possible ;*

— *le régime de Brillouin est moins stable que les régimes bidromiques :* quand, en faisant varier les conditions expérimentales, on rend possible un régime bidromique le nuage de Brillouin se désorganise : on observe une transition qui conduit à un régime bidromique.

Il est probable, mais c'est une question qui reste à étudier, que ces deux conclusions peuvent s'appliquer aux autres types de magnétrons.

Travail effectué au Laboratoire de Physique de l'École normale supérieure

BIBLIOGRAPHIE

(1) A. W. Hull. — *Physical Review*, 1921, **18**, 31-61 ; 1924, **23**, 112.
(2) S. J. Braude. — *Phys. Z. Sowjet*, 1937, **12**, 1
(3) L. Brillouin. — *Journal de Physique et le Radium*, 1940, **1**, 233-241.
(4) G. Goudet et A. Blanc-Lapierre. — *Journal de Physique et le Radium*, 1945, **6**, 146.
(5) Voge. — *L'onde électrique*, 1946, **26**, 345-354 et 3 4-386.
(6) W. P. Allis. — *M. I. T. Radiation Laboratory Report*, 1942, **3**, 43.
(7) J. C. Slater. — *M. I. T. Radiation Laboratory Report*, 1941, V, **55**.
(8) L. Brillouin. — *Phys. Rev.*, 1941, **60**, 385.
(9) E. B. Moullin. — *Proc. Camb Phil. Soc.*, 1940, **36**, 94.
(10) Hartree. — *British Report C. V. D. Mag.*, 1941, **1** ; 1941, **3** ; 1941, **6** ; 1942, **12** ; 1942, **23** ; 1943, **30**.
(11) E. C. Stoner. — *British Report C. V. D. Mag.*, 1941, **8** ; 1942, **16** ; 1942, **17** ; 1942, **25**.
(12) L. Page et N. I. Adams. — *Phys. Rev.*, 1946, **69**, 492 500.
(13) J. C. Slater. — *Microwave Electronics*. Van Nostrand. N. Y. 1950.
(14) L. Brillouin et F. Bloch. — *Advances in Electronics*, III, 145-181. Academic Press N. Y. 1951.
(15) D. Gabor. — *Brit. Journ. of Appl. Physics*, 1951, **2**, 209-218.
(16) A. F. Harvey. — *High Frequency Thermionic Tubes*. Chapman et Hall, Londres, 1944.
(17) I. Langmuir et C. Blodgett. — *Phys. Rev.*. 1923, **22**, 347-356.
(18) J. L. Delcroix. — *Comptes Rendus*, 1951, **232**, 2298-2300.
(19) J. L. Delcroix. — *Thèse de Doctorat*. Université de Paris, juin 1953

CONTRIBUTION A L'ÉTUDE DU PHÉNOMÈNE DE MAGNÉTOSTRICTION

Par Roger VAUTIER

INTRODUCTION

Lorsqu'un échantillon d'un corps ferromagnétique est placé dans un champ magnétique, ses dimensions varient légèrement. Ce phénomène, découvert par Joule en 1847, est appelé magnétostriction.

La variation relative de longueur est communément désignée par λ. Les recherches déjà faites, notamment celles de R. Becker et celles de M. Kornetzki, ont montré que cet effet, que l'on peut constater et mesurer directement, est la résultante de plusieurs effets élémentaires [1, p. 272].

La déformation spontanée du réseau λ_s est due à l'existence de l'aimantation spontanée, en l'absence de champ magnétique extérieur. Elle dépend naturellement de la direction de l'aimantation spontanée. Dans le cas d'un monocristal, il est devenu classique d'utiliser une relation basée sur des considérations de symétrie pour représenter la variation de la magnétostriction en fonction de la direction d'aimantation et de la direction de mesure [1, p. 134 et 3, p. 650]. On admet souvent en première approximation que la déformation spontanée du réseau est la cause unique de la magnétostriction en longueur, les autres effets étant faibles vis-à-vis de celui-là.

Toutefois, pour une interprétation plus exacte des mesures, il faut tenir compte de deux autres effets. *L'effet de forme* est dû à l'existence du champ démagnétisant de l'échantillon. Il déforme l'échantillon de telle sorte qu'un équilibre s'établit lorsque l'énergie totale comprenant en particulier l'énergie de champ du champ démagnétisant et l'énergie élastique de déformation est minimum. *La magnétostriction contrainte* est la déformation du corps engendrée par l'application d'un champ magnétique extérieur. Elle a été

(¹) Thèse présentée le 1er juin 1953 à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques.

mise expérimentalement en évidence par M. Kornetzki [15] dans la magnétostriction en volume et dans la magnétostriction en longueur. D'après les résultats des mesures de Kornetzki, ce serait une contraction ou une dilatation égale dans toutes les directions.

Il est d'un grand intérêt d'approfondir l'étude de la magnétostriction, car elle joue un rôle important dans les phénomènes d'aimantation. On sait en effet qu'un corps ferromagnétique quelconque, en l'absence d'un champ extérieur, est divisé en de nombreux petits domaines, et que chaque domaine est aimanté spontanément. A l'intérieur de chaque domaine, la direction de l'aimantation spontanée $\vec{J_s}$ est fixée par :

a) *l'énergie magnétocristalline* qui entraîne l'existence de directions cristallines privilégiées, souvent appelées directions de facile aimantation ;

b) *l'énergie magnétoélastique*. S'il existe des tensions, il est facile de comprendre que, par suite du phénomène de magnétostriction, elles interviennent pour différencier énergétiquement les directions de facile aimantation ;

c) *l'énergie de champ démagnétisant* classique.

La magnétostriction joue donc un rôle essentiel dans les propriétés magnétiques des substances. Mais il faut noter tout de suite que pour évaluer l'énergie magnétoélastique, il peut être nécessaire de séparer les effets élémentaires composant la magnétostriction apparente. En particulier, si la magnétostriction contrainte est vraiment un effet isotrope, on ne doit pas en tenir compte pour l'étude des phénomènes liés à l'anisotropie du matériau. Il est donc important de préciser ce point.

D'autre part, il est connu qu'une des principales causes d'erreur pour l'interprétation des mesures de magnétostriction longitudinale est l'incertitude au sujet de l'état initial de l'échantillon. En effet, on utilise la plupart du temps un échantillon désaimanté, et l'on suppose que cet état correspond à l'équipartage de l'aimantation spontanée entre toutes les directions. Mais ce partage n'est réalisé que rarement, et il est souvent impossible de connaître la répartition de l'aimantation spontanée entre les différentes directions.

Pour qu'une mesure de λ sur un matériau soit utilisable, il faut donc que l'état initial soit bien défini et unique dans des conditions opératoires déterminées. Il n'est pas indispensable que cet état corresponde à l'équipartage de $\vec{J_s}$ pourvu que l'on connaisse la répartition de l'aimantation spontanée. Inversement, la mesure de la magnétostriction apparente à partir d'un état initial inconnu est un moyen d'investigation permettant d'avoir des renseignements sur cet état, si l'on connaît par ailleurs la magnétostriction du matériau isotrope.

En particulier, on utilise de plus en plus, dans la fabrication des matériaux magnétiques, la technique de l'orientation. Cette opération consiste à laisser refroidir le matériau dans un champ magnétique de valeur suffisante. On crée ainsi une direction favorisée suivant laquelle on peut obtenir des propriétés nettement améliorées. Certains traitements mécaniques, le laminage par exemple, provoquent aussi une anisotropie du matériau. La magnétostriction est un auxiliaire très précieux pour l'étude de ces phénomènes d'orientation.

PREMIÈRE PARTIE

CONSIDÉRATIONS THÉORIQUES

On sait que, d'une façon générale, l'équilibre d'un système est déterminé par la condition que son potentiel thermodynamique soit minimum. Comme potentiel thermodynamique d'un échantillon placé dans un champ magnétique, j'utilise l'expression [1, p. 62-64] :

$$V_0\Phi = V_0A - V\sum_k H_kJ_k - V_0\sum_{kl} t_{kl}s_{kl}$$

dans laquelle :

A est l'énergie utilisable de l'échantillon rapportée à l'unité de volume du corps non déformé, dans un champ nul,

V le volume de l'échantillon déformé,

V_0 le volume de l'échantillon non déformé,

H_k et J_k sont les composantes du champ magnétique $\overrightarrow{H}$ et de l'aimantation $\overrightarrow{J}$,

t_{kl} et s_{kl} sont respectivement les composantes du tenseur t des tensions et les composantes du tenseur s des déformations.

Je considère l'énergie utilisable A comme une fonction des cosinus directeurs α_i de l'aimantation spontanée et des composantes s_{kl} du tenseur déformation. Par définition, j'appelle réseau non déformé le réseau cubique dont le volume est égal au volume du réseau véritable lorsque l'aimantation spontanée est dans une direction de facile aimantation. Il est nécessaire de faire ici une remarque en attirant l'attention sur l'arbitraire de cette définition. En réalité, on devrait prendre comme état non déformé l'état du réseau pour une aimantation spontanée nulle. Mais cet état n'est pas réalisable effectivement. On ne peut le déduire que de l'étude des courbes de dilatation thermique. Au-dessus du point de Curie, l'aimantation spontanée est

nulle et la courbe dilatométrique suit la loi de dilatation normale du matériau. Il est possible d'extrapoler cette courbe au-dessous du point de Curie et de connaître ainsi par différence avec la courbe réelle l'effet dû à l'aimantation spontanée. Chevenard [9] a étudié expérimentalement les courbes de dilatation des ferromagnétiques et L. Néel [18] a donné une représentation théorique satisfaisante des anomalies constatées. Si l'on compare ces résultats avec les mesures où l'on fait varier la direction de $\vec{J}_s$, il apparaît que la déformation du réseau cristallin due à l'existence de l'aimantation spontanée présente une partie isotrope relativement élevée ($\Delta l/l$ est de l'ordre de -10^{-4} pour Ni, -10^{-3} pour Fe) et une partie anisotrope beaucoup plus faible. En général, l'étude de la magnétostriction a pour but l'étude de son influence sur l'anisotropie du matériau. C'est ce qui justifie que l'on puisse faire abstraction de la partie isotrope.

Le tenseur déformation s_{kl} est défini par :

$$s_{kl} = \frac{1}{2}\left(\frac{\partial u_k}{\partial x_l} - \frac{\partial u_l}{\partial x_k}\right)$$

en désignant par u_k les composantes du déplacement $\vec{u}$ d'un point.

Je me limite au cas des matériaux appartenant au système cubique, et je n'envisage que des transformations isothermes.

Pour que les mesures faites sur un échantillon particulier aient une signification générale, je distingue dans l'énergie utilisable A la partie A^M dépendant uniquement de la nature du matériau, et la partie A^F dépendant de la forme de l'échantillon :

$$A = A^M + A^F.$$

En développant A^M suivant les puissances croissantes des s_{kl}, je pose :

$$A^M = A_0 + A_1 + A_2.$$

A_0 ne contenant pas les s_{kl} ne dépend que des α_i. On a l'habitude de l'appeler partie cristalline de A.

Etant indépendante des déformations, elle ne présente pas d'intérêt pour notre calcul.

A_1 est du premier degré en s_{kl}. C'est la partie de l'énergie correspondant à la magnétostriction. A_2 du deuxième degré en s_{kl} est la partie élastique de l'énergie utilisable. En limitant ce développement aux termes du second degré par rapport aux déformations, je suppose être encore dans le domaine de validité de la loi de Hook, ce qui est sûrement vrai, étant donné l'ordre de grandeur des s_{kl}.

Considérons d'abord le cas d'un petit cristal élémentaire. En se basant uniquement sur des caractères de symétrie, R. Becker et W. Doring [1, p. 134 et 3, p. 650] ont représenté l'énergie de magnétostriction par un polynôme du quatrième degré en α_i. Par un

groupement particulier des termes, ils obtiennent alors pour la variation de longueur dans la direction de cosinus directeurs β_i la formule :

$$\begin{aligned}\left(\frac{\Delta l}{l}\right)_{\alpha_i,\beta_i} = & h_1\left(\alpha_1^2\beta_1^2 + \alpha_2^2\beta_2^2 + \alpha_3^2\beta_3^2 - \frac{1}{3}\right) \\ & + h_2(2\alpha_1\alpha_2\beta_1\beta_2 + 2\alpha_2\alpha_3\beta_2\beta_3 + 2\alpha_3\alpha_1\beta_3\beta_1) \\ & + h_4\left(\alpha_1^4\beta_1^2 + \alpha_2^4\beta_2^2 + \alpha_3^4\beta_3^2 + \frac{2}{3}s_1 - \frac{1}{3}\right) \\ & + h_5(2\alpha_1\alpha_2\alpha_3^2\beta_1\beta_2 + 2\alpha_2\alpha_3\alpha_1^2\beta_2\beta_3 + 2\alpha_3\alpha_1\alpha_2^2\beta_3\beta_1) \\ & - (b_0 + b_3 s)\frac{1}{3K}.\end{aligned}$$

Les coefficients h_1 à h_5, b_0 et b_3 sont déterminés par l'expérience. Cependant, il existe peu de résultats expérimentaux sur la magnétostriction des monocristaux. Les plus complets concernent le nickel. Ce sont les mesures faites par Y. Masiyama [16]. Toutefois, les courbes λ(H) qu'il a publiées montrent que les mesures n'ont pas été conduites jusqu'à la saturation. De plus une courbe relative au plan (111) semble montrer qu'un terme du sixième degré en α_i serait nécessaire pour représenter correctement les mesures. Mais une incertitude subsiste parce que justement le cristal n'était pas saturé. Les mesures de Carr et Smoluchovski sur un monocristal de Fe — Si [8] ainsi que celles de Bozorth et Walker [4] et Bozorth et Hamming [5] sur des monocristaux de Ni et de Ni — Fe, concernent seulement les plans (001) et (110).

J'ai donc repris ce calcul en introduisant dans l'expression de l'énergie de magnétostriction des termes du sixième degré en α_i. Les axes de coordonnées étant parallèles aux axes principaux du réseau cubique, les symétries cubiques conduisent à l'expression :

$$\begin{aligned}A^M = & b_0(s_{11} + s_{22} + s_{33}) + b_1(\alpha_1^2 s_{11} + \alpha_2^2 s_{22} + \alpha_3^2 s_{33}) + b_2(\alpha_1^4 s_{11} + \alpha_2^4 s_{22} + \alpha_3^4 s_{33}) \\ & + b_3'(s_{11} + s_{22} + s_{33})s + b_4(\alpha_1^6 s_{11} + \alpha_2^6 s_{22} + \alpha_3^6 s_{33}) \\ & + b_5[(\alpha_2^6 + \alpha_3^6)s_{11} + (\alpha_3^6 + \alpha_1^6)s_{22} + (\alpha_1^6 + \alpha_2^6)s_{33}] + b_6 p(s_{11} + s_{22} + s_{33}) \\ & + b_7(\alpha_1\alpha_2 s_{12} + \alpha_2\alpha_3 s_{23} + \alpha_3\alpha_1 s_{31}) + b_8(\alpha_1\alpha_2\alpha_3^2 s_{12} + \alpha_2\alpha_3\alpha_1^2 s_{23} + \alpha_3\alpha_1\alpha_2^2 s_{31}) \\ & + b_9(\alpha_1\alpha_2\alpha_3^4 s_{12} + \alpha_2\alpha_3\alpha_1^4 s_{23} + \alpha_3\alpha_1\alpha_2^4 s_{31}) + b_{10}(\alpha_1^3\alpha_2^3 s_{12} + \alpha_2^3\alpha_3^3 s_{23} + \alpha_3^3\alpha_1^3 s_{31})\end{aligned}$$

s et p représentent respectivement les expressions :

$$\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2 \qquad \text{et} \qquad \alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2.$$

Pour la partie élastique A_2 de l'énergie, on peut adopter indifférement l'une des deux expressions :

$$A_2 = \frac{1}{2}C_1(s_{11} + s_{22} + s_{33})^2 + C_2(s_{11}^2 + s_{22}^2 + s_{33}^2) + 2C_3(s_{12}^2 + s_{23}^2 + s_{31}^2) \qquad \text{(I-1)}$$

$$\left.\begin{aligned}A_2 = \frac{1}{2}C_{11}(s_{11}^2 + s_{22}^2 + s_{33}^2) + C_{12}(s_{11}s_{22} + s_{22}s_{33} + s_{33}s_{11}) \\ + 2C_{44}(s_{12}^2 + s_{23}^2 + s_{31}^2)\end{aligned}\right\} \text{(I-2)}$$

Ces expressions supposent que les constantes élastiques sont indépendantes de la direction de l'aimantation spontanée. En fait, les mesures directes des constantes élastiques par H. J. McSkimin [17] ont montré que ce n'est pas rigoureusement vrai. Le cristal étant déformé, sa symétrie devient inférieure à la symétrie cubique, les trois constantes élastiques du réseau cubique primitif sont modifiées et des constantes supplémentaires sont nécessaires. Mais cet effet n'est pas sensible dans les mesures de magnétostriction faites jusqu'à présent. W. P. Mason [17] a évalué l'énergie correspondant à ce phénomène, appelé effet morphique, en introduisant dans A_2 des termes dont les coefficients sont fonction des cosinus directeurs α_i. D'après les mesures de H. J. McSkimin, il trouve ainsi que les termes de l'énergie morphique sont, dans le cas du nickel, égaux aux termes magnétostrictifs pour des tensions de l'ordre de 100 kg/mm². L'effet morphique étant proportionnel au carré des tensions, cela explique qu'il soit négligeable pour les tensions existant habituellement dans les matériaux magnétiques doux.

La partie A^F de l'énergie utilisable dépendant de la forme de l'échantillon est due à l'existence du champ démagnétisant.

Dans le cas d'un ellipsoïde, l'aimantation $\vec{J}$ crée un champ démagnétisant $\vec{H^D}$ uniforme et calculable. Si l'on prend comme axes de coordonnées les axes principaux de l'ellipsoïde, les composantes du champ démagnétisant sont données par :

$$H_k^D = N_k J_k.$$

L'énergie mise en jeu par ce champ démagnétisant est :

$$\sum_k \int N_k J_k d(VJ_k).$$

Pour calculer cette intégrale, R. Becker [1, p. 293] [2] admet que l'on peut, sans erreur sensible, négliger les petites variations du volume et des coefficients N provenant de l'aimantation et obtient :

$$A^F = \frac{1}{V_0} \sum_k \frac{1}{2} VN_k J_k^2.$$

L'équilibre est déterminé par les conditions :

$$\frac{\partial \Phi}{\partial s_{ij}} = \frac{\partial A_1}{\partial s_{ij}} + \frac{\partial A_2}{\partial s_{ij}} + \frac{\partial A^F}{\partial s_{ij}} - \frac{\partial}{\partial s_{ij}}\left(\frac{V}{V_0}\sum_k H_k J_k\right) - \frac{\partial}{\partial s_{ij}}\left(\sum_{kl} t_{kl} s_{kl}\right) = 0.$$

Nous verrons que, étant donné l'ordre de grandeur des déformations, toutes ces dérivées, sauf $\frac{\partial A_2}{\partial s_{ij}}$, sont indépendantes des déformations. Nous pouvons donc poser :

$$s_{ij} = s_{ij}^0 + s_{ij}^F + s_{ij}^H + s_{ij}^t$$

en appelant s_{ij}^0 la déformation spontanée du réseau :

s_{ij}^F la déformation dépendant de la forme de l'échantillon ;

s_{ij}^H la déformation due à l'action du champ magnétisant ;

s_{ij}^t la déformation due à l'action des tensions extérieures.

Nous avons admis que les constantes élastiques ne dépendent pas de la direction de l'aimantation spontanée. Cela signifie que les déformations s_{ij}^t dues à des tensions extérieures sont indépendantes de l'état d'aimantation, à condition que celui-ci ne soit pas modifié par l'application de ces tensions. Or nous savons qu'en réalité, l'application de tensions extérieures est susceptible de modifier l'état de l'échantillon du point de vue répartition en orientation de l'aimantation spontanée. Il est donc logique que l'on obtienne des courbes $\lambda(H)$ différentes suivant que l'échantillon est soumis ou non à des tensions, parce qu'alors l'état initial n'est pas le même. Mais ces différences doivent être imputées à la déformation spontanée du réseau s_{ij}^0 et non aux déformations s_{ij}^t. Dans ce qui suit, je négligerai donc les déformations s_{ij}^t dues à des tensions éventuelles.

Pour mettre en évidence d'une façon plus explicite les déformations s_{ij}^0, s_{ij}^F et s_{ij}^H, je considère d'abord le cas d'un monocristal. Les axes de référence étant toujours parallèles aux axes du réseau cubique, je prends comme expression de l'énergie élastique la formule (I-1). Les équations d'équilibre s'écrivent en posant :

$$\frac{V}{V_0}\sum_k H_k J_k = W^H$$

$$\left\{\begin{array}{l} \dfrac{\partial\Phi}{\partial s_{11}} = \dfrac{\partial A_1}{\partial s_{11}} + C_1(s_{11}+s_{22}+s_{33}) + 2C_2 s_{11} + \dfrac{\partial A^F}{\partial s_{11}} - \dfrac{\partial W^H}{\partial s_{11}} = 0 \\ \qquad\qquad \text{et les deux analogues.} \\ \dfrac{\partial\Phi}{\partial s_{12}} = \dfrac{\partial A_1}{\partial s_{12}} + 4C_3 s_{12} + \dfrac{\partial A^F}{\partial s_{12}} - \dfrac{\partial W^H}{\partial s_{12}} = 0 \\ \qquad\qquad \text{et les deux analogues.} \end{array}\right.$$

Les trois premières équations donnent facilement :

$$s_{11} = -\frac{1}{2C_2}\left(\frac{\partial A_1}{\partial s_{11}} + \frac{\partial A^F}{\partial s_{11}} - \frac{\partial W^H}{\partial s_{11}}\right) + \frac{C_1}{2C_2(3C_1+2C_2)} \left(\frac{\partial A_1}{\partial s_{11}} + \frac{\partial A_1}{\partial s_{22}} + \frac{\partial A_1}{\partial s_{33}} + \frac{\partial A^F}{\partial s_{11}} + \frac{\partial A^F}{\partial s_{22}} + \frac{\partial A^F}{\partial s_{33}} - \frac{\partial W^H}{\partial s_{11}} - \frac{\partial W^H}{\partial s_{22}} - \frac{\partial W^H}{\partial s_{33}}\right)$$

et les analogues.

Les trois dernières équations donnent immédiatement :

$$s_{12} = -\frac{1}{4C_3}\left(\frac{\partial A_1}{\partial s_{12}} + \frac{\partial A^F}{\partial s_{12}} - \frac{\partial W^H}{\partial s_{12}}\right)$$

et les analogues.

Dans le cas d'un échantillon polycristallin, les axes de référence sont pris parallèles aux axes principaux de l'ellipsoïde (ce que j'indique en remplaçant les indices 1, 2, 3, par les indices x, y, z). L'échantillon étant alors isotrope, l'énergie élastique s'exprime en fonction du module de compression K et du module de cisaillement G par :

$$A_2 = \frac{1}{2}\left(K - \frac{2}{3}G\right)(s_{xx} + s_{yy} + s_{zz})^2 + G(s_{xx}^2 + s_{yy}^2 + s_{zz}^2 + 2s_{xy}^2 + 2s_{yz}^2 + 2s_{zx}^2)$$

et les équations d'équilibre s'écrivent :

$$\frac{\partial \Phi}{\partial s_{xx}} = \frac{\partial A_1}{\partial s_{xx}} + \left(K - \frac{2}{3}G\right)(s_{xx} + s_{yy} + s_{zz}) + 2Gs_{xx} + \frac{\partial A^F}{\partial s_{xx}} - \frac{\partial W^H}{\partial s_{xx}} = 0$$

$$\frac{\partial \Phi}{\partial s_{xy}} = \frac{\partial A_1}{\partial s_{xy}} + 2Gs_{xy} + \frac{\partial A^F}{\partial s_{xy}} - \frac{\partial W^H}{\partial s_{xy}} = 0$$

et les analogues.

On obtient sans difficulté :

$$s_{xx} = -\frac{1}{2G}\left(\frac{\partial A_1}{\partial s_{xx}} + \frac{\partial A^F}{\partial s_{xx}} - \frac{\partial W^H}{\partial s_{xx}}\right) + \frac{3K - 2G}{18KG}$$
$$\left(\frac{\partial A_1}{\partial s_{xx}} + \frac{\partial A_1}{\partial s_{yy}} + \frac{\partial A_1}{\partial s_{zz}} + \frac{\partial A^F}{\partial s_{xx}} + \frac{\partial A^F}{\partial s_{yy}} + \frac{\partial A^F}{\partial s_{zz}} - \frac{\partial W^H}{\partial s_{xx}} - \frac{\partial W^H}{\partial s_{yy}} - \frac{\partial W^H}{\partial s_{zz}}\right)$$

$$s_{xy} = -\frac{1}{2G}\left(\frac{\partial A_1}{\partial s_{xy}} + \frac{\partial A^F}{\partial s_{xy}} - \frac{\partial W^H}{\partial s_{xy}}\right)$$

et les analogues.

Déformation spontanée du réseau. — Je vais d'abord considérer comme cas particulier celui où le champ magnétique agissant sur le matériau est nul, ainsi que les tensions. Je fais de plus abstraction de l'effet de forme. La déformation résultante est alors celle que l'on appelle déformation spontanée du réseau. Cette étude est particulièrement intéressante pour les monocristaux. Le potentiel thermodynamique se réduit à :

$$\Phi = A_1 + A_2.$$

Je considère les α_i comme donnés, ce qui correspond à une direction d'aimantation déterminée. Les conditions d'équilibre

$$\frac{\partial \Phi}{\partial s_{ik}} = 0$$

donnent immédiatement :

$$s_{11} = -\frac{1}{2C_2}[b_0 + b_1\alpha_1^2 + b_2\alpha_1^4 + b_3 s + b_4\alpha_1^6 + b_5(\alpha_2^6 + \alpha_3^6) + b_6 p]$$
$$+ \frac{1}{2C_2}\frac{C_1}{3K}[(3b_0 + b_1 + b_2) - (2b_2 - 3b_3)s + (b_4 + b_5)(\alpha_1^6 + \alpha_2^6 + \alpha_3^6) + 3b_6 p]$$

$$s_{12} = -\frac{1}{4C_3}[b_7\alpha_1\alpha_2 + b_8\alpha_1\alpha_2\alpha_3^2 + b_9\alpha_1\alpha_2\alpha_3^4 + b_{10}\alpha_1^3\alpha_2^3]$$

et les analogues.

La variation de longueur dans la direction β_i quand l'aimantation est dans la direction α_i est fournie par :

$$\frac{\Delta l}{l} = \sum_{ik} s_{ik}\beta_i\beta_k$$

ou, en groupant les termes semblables et en posant :

$$h_0 = \frac{1}{2C_2}\left(\frac{C_1(3b_0+b_1+b_2)}{3K} - b_0\right) \qquad h_1 = -\frac{b_1}{2C_2} \qquad h_2 = -\frac{b_2}{2C_2}$$

$$h_3 = -\left(\frac{b_3}{2C_2} + \frac{C_1(2b_2-3b_3)}{6C_2K}\right) \qquad h_4 = \frac{-b_4+b_5}{2C_2} \qquad h_5 = \frac{C_1(b_4+2b_5)}{6C_2K} - \frac{b_5}{2C_2}$$

$$h_6 = \frac{b_6}{2C_2}\left(\frac{b_4}{K} - 1\right) \quad h_7 = -\frac{b_7}{4C_3} \quad h_8 = -\frac{b_8}{4C_3} \quad h_9 = -\frac{b_9}{4C_3} \quad h_{10} = -\frac{b_{10}}{4C_3}$$

$$\begin{aligned}\frac{\Delta l}{l} = {} & h_0 + h_1(\alpha_1^2\beta_1^2 + \alpha_2^2\beta_2^2 + \alpha_3^2\beta_3^2) + h_2(\alpha_1^4\beta_1^2 + \alpha_2^4\beta_2^2 + \alpha_3^4\beta_3^2) \\ & + h_3 s + h_4(\alpha_1^6\beta_1^2 + \alpha_2^6\beta_2^2 + \alpha_3^6\beta_3^2) + h_5(\alpha_1^6 + \alpha_2^6 + \alpha_3^6) + h_6 p \\ & + h_7(\alpha_1\alpha_2\beta_1\beta_2 + \alpha_2\alpha_3\beta_2\beta_3 + \alpha_3\alpha_1\beta_3\beta_1) \\ & + h_8(\alpha_1\alpha_2\alpha_3^2\beta_1\beta_2 + \alpha_2\alpha_3\alpha_1^2\beta_2\beta_3 + \alpha_3\alpha_1\alpha_2^2\beta_3\beta_1) \\ & + h_9(\alpha_1\alpha_2\alpha_3^4\beta_1\beta_2 + \alpha_2\alpha_3\alpha_1^4\beta_2\beta_3 + \alpha_3\alpha_1\alpha_2^4\beta_3\beta_1) \\ & + h_{10}(\alpha_1^3\alpha_2^3\beta_1\beta_2 + \alpha_2^3\alpha_3^3\beta_2\beta_3 + \alpha_3^3\alpha_1^3\beta_3\beta_1) \end{aligned} \qquad \text{(I-3)}$$

Pour obtenir une expression représentant la variation de longueur dans la direction de cosinus directeurs β_i entre l'état désaimanté idéal où $\overrightarrow{J_s}$ est répartie également entre les directions de facile aimantation et l'état d'aimantation α_i, il faut retrancher de l'expression ci-dessus sa valeur pour l'état désaimanté.

L'étude expérimentale doit être faite sur des ellipsoïdes afin que les grandeurs champ et aimantation dans l'échantillon étant uniformes soient bien définies. Pour pouvoir faire varier la direction de mesure ou la direction d'aimantation, il est commode d'utiliser un ellipsoïde de révolution aplati, la direction de mesure ainsi que l'aimantation restant dans le plan équatorial. Je vais expliciter les cosinus directeurs α_i et β_i en fonction des angles permettant de repérer matériellement les directions.

Les axes de coordonnées étant toujours choisis parallèles aux axes du réseau cubique, soit XYZ le plan de travail (fig. 1). Son équation normale est :

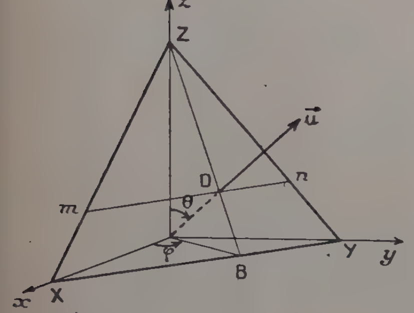
$$x \sin\theta \cos\varphi + y \sin\theta \sin\varphi + z \cos\theta = p.$$

Dans le plan XYZ prenons comme origine des angles la direction $\overrightarrow{Dm}$ parallèle au plan xoy et considérons les axes rectangulaires $\overrightarrow{DL}$, $\overrightarrow{DN}$ dont l'orientation est définie par :

$$\omega = (\overrightarrow{Dm}, \overrightarrow{DL}).$$

$\overrightarrow{DL}$ est pris comme direction de mesure. Ses cosinus directeurs sur les axes *oxyz* sont :

$$\overrightarrow{L} \begin{cases} \beta_1 = \cos\omega \sin\varphi + \sin\omega \cos\theta \cos\varphi \\ \beta_2 = -\cos\omega \cos\varphi + \sin\omega \cos\theta \sin\varphi \\ \beta_3 = -\sin\omega \sin\theta. \end{cases}$$



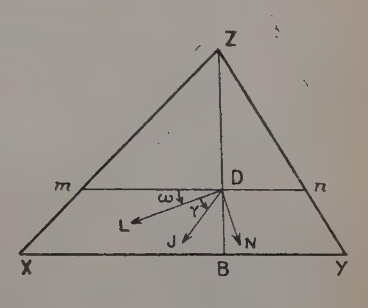


Fig. 1.

La direction $\overrightarrow{DJ}$ de l'aimantation est repérée par l'angle :

$$\gamma = (\overrightarrow{DL}, \overrightarrow{DJ}).$$

Les cosinus directeurs de $\overrightarrow{J}$ sur les axes *oxyz* sont :

$$\overrightarrow{J} \begin{cases} \alpha_1 = (\cos\gamma\cos\omega - \sin\gamma\sin\omega)\sin\varphi + (\cos\gamma\sin\omega + \sin\gamma\cos\omega)\cos\theta\cos\varphi \\ \alpha_2 = -(\cos\gamma\cos\omega - \sin\gamma\sin\omega)\cos\varphi + (\cos\gamma\sin\omega + \sin\gamma\cos\omega)\cos\theta\sin\varphi \\ \alpha_3 = -(\cos\gamma\sin\omega + \sin\gamma\cos\omega)\sin\theta \end{cases}$$

En utilisant les notations :

$$\begin{aligned} &A = \sin^2\theta & &B = \cos\theta \\ &L = \sin^2\varphi\cos^2\varphi & &P = (\sin^6\varphi + \cos^6\varphi) \\ &M = (\sin^4\varphi + \cos^4\varphi) & &R = \sin\varphi\cos\varphi\,(\cos^6\varphi - \sin^6\varphi) \\ &N = \sin\varphi\cos\varphi\,(\cos^2\varphi - \sin^2\varphi) & &S = (\sin^8\varphi + \cos^8\varphi) \end{aligned}$$

les expressions en α_i et β_i de l'équation (I-3) deviennent :

$$\alpha_1^2\beta_1^2 + \alpha_2^2\beta_2^2 + \alpha_3^2\beta_3^2 =$$

$$\begin{aligned} &1/8\,(2 + \cos 2\gamma)[A^2 + 4B^2L + (1 + B^4)M] \\ &+ \sin 2\omega/4\,[\sin 2\gamma \quad (A^2 - M + B^4M) - 2(1 + \cos 2\gamma)ABN] \\ &+ \cos 2\omega/4\,[-(1 + \cos 2\gamma)(\qquad) - 2\sin 2\gamma \times \qquad] \\ &+ \sin 4\omega/8\,[-\sin 2\gamma(A^2 - 12B^2L + M + B^4M) - 4\cos 2\gamma \times B(1 + B^2)N] \\ &+ \cos 4\omega/8\,[\cos 2\gamma(\qquad) - 4\sin 2\gamma \times \qquad] \end{aligned}$$

$\alpha_1^4\beta_1^2 + \alpha_2^4\beta_2^2 + \alpha_3^4\beta_2^3 =$

$$\begin{aligned}
&1/16 \quad (3 + 2\cos 2\gamma)[A^3 + 3B^2(1 + B^2)L + (1 + B^6)P] \\
&+ \sin 2\omega/32 \; [\;(8\sin 2\gamma + \sin 4\gamma)K_1 - 2(6 + 8\cos 2\gamma + \cos 4\gamma)B(1 - B^4)N] \\
&+ \cos 2\omega/32 \; [-(6 + 8\cos 2\gamma + \cos 4\gamma)K_1 - 2(8\sin 2\gamma + \sin 4\gamma) \qquad] \\
&+ \sin 4\omega/16 \; [-(2\sin 2\gamma + \sin 4\gamma)K_2 - 4(2\cos 2\gamma + \cos 4\gamma)B(1 + B^4)N] \\
&+ \cos 4\omega/16 \; [\;(2\cos 2\gamma + \cos 4\gamma)K_2 - 4(2\sin 2\gamma + \sin 4\gamma) \qquad] \\
&+ \sin 6\omega/32 \; [\;\sin 4\gamma(A^3 + 15AB^2L - P + B^6P) - 6\cos 4\gamma \times B(1 - B^4)N] \\
&+ \cos 6\omega/32 \; [-\cos 4\gamma(\qquad) - 6\sin 4\gamma \times \qquad]
\end{aligned}$$

avec : $K_1 = A^3 - AB^2L - P + B^6P \qquad K_2 = A^3 - 5B^2L + P + B^6P$

$s = \alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2 =$

$$\begin{aligned}
&1/8 \quad [1 + 3AB^2 + 3A^2L] \\
&+ \sin 2\omega/2 \; [\;\sin 2\gamma(AB^2 - L + B^4L) + \cos 2\gamma \times ABN] \\
&+ \cos 2\omega/2 \; [-\cos 2\gamma(\qquad) + \sin 2\gamma \times \qquad] \\
&+ \sin 4\omega/8 \; [\;\sin 4\gamma(1 - AB^2 - L - 6B^2L - B^4L) + 2\cos 4\gamma \times B(1 + B^2)N] \\
&+ \cos 4\omega/8 \; [-\cos 4\gamma(\qquad) + 2\sin 4\gamma \times \qquad]
\end{aligned}$$

$\alpha_1^6\beta_1^2 + \alpha_2^6\beta_2^2 + \alpha_3^6\beta_3^2 =$

$$\begin{aligned}
&5/128 \quad (4 + 3\cos 2\gamma)[A^4 + 12B^4L^2 + 4B^2(1 + B^4)LM + (1 + B^8)S] \\
&+ \sin 2\omega/64 \; [(15\sin 2\gamma + 3\sin 4\gamma)K_1 - 2(10 + 15\cos 2\gamma + 3\cos 4\gamma)K_2] \\
&+ \cos 2\omega/64 \; [-2(\qquad)K_2 - 2(\qquad)K_1] \\
&+ \sin 4\omega/128 \; [-(15\sin 2\gamma + 12\sin 4\gamma + \sin 6\gamma)K_3 - 4(15\cos 2\gamma + 12\cos 4\gamma + \cos 6\gamma)K_4] \\
&+ \cos 4\omega/128 \; [-4(\qquad)K_4 + (\qquad)K_3] \\
&+ \sin 6\omega/64 \; [(3\sin 4\gamma + \sin 6\gamma)K_5 + (3\cos 4\gamma + \cos 6\gamma)K_6] \\
&+ \cos 6\omega/64 \; [(\qquad)K_6 + (\qquad)K_5] \\
&+ 1/128\,(-\sin 8\omega \sin 6\gamma + \cos 8\omega \cos 6\gamma)(A^4 + 140B^4L^2 - 28B^2LM - 28B^6LM + S + B^8S) \\
&+ 1/128\,(\;\sin 8\omega \cos 6\gamma + \cos 8\omega \sin 6\gamma)(56B^3LN + 56B^5LN - 8BR - 8B^7R)
\end{aligned}$$

avec :

$$\begin{aligned}
K_1 &= A^4 - 2B^2LM + 2B^6LM - S + B^8S \\
K_2 &= 3AB^3LN + BR - B^7R \\
K_3 &= A^4 - 20B^4L^2 - 4B^2LM - 4B^6LM + S + B^8S \\
K_4 &= B^3LN + B^5LN + BR + B^7R \\
K_5 &= A^4 + 14B^2LM - 14B^6LM - S + B^8S \\
K_6 &= 14AB^3LN - 6BR + 6B^7R
\end{aligned}$$

$\alpha_1^6 + \alpha_2^6 + \alpha_3^6 =$

$$\begin{aligned}
&1/16 \quad [5A^3 + 15B^2(1 + B^2)L + 5(1 + B^6)P] \\
&+ \sin 2\omega/32 \; [\;15\sin 2\gamma(A^3 - AB^2L - P + B^6P) - 30\cos 2\gamma \times B(1 - B^4)N] \\
&+ \cos 2\omega/32 \; [-15\cos 2\gamma(\qquad) - 30\sin 2\gamma \times \qquad] \\
&+ \sin 4\omega/32 \; [-\;6\sin 4\gamma(A^3 - 5B^2L - 5B^4L + P + B^6P) - 24\cos 4\gamma \times B(1 + B^4)N] \\
&+ \cos 4\omega/32 \; [\;6\cos 4\gamma(\qquad) - 24\sin 4\gamma \times \qquad] \\
&+ \sin 6\omega/32 \; [\;\sin 6\gamma(A^3 + 15AB^2L - P + B^6P) - 6\cos 6\gamma \times B(1 - B^4)N] \\
&+ \cos 6\omega/32 \; [-\cos 6\gamma(\qquad) - 6\sin 6\gamma \times \qquad]
\end{aligned}$$

$p = \alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2 =$

$$\begin{aligned}
&1/16 \quad [A(1 - 4B^2 + 5B^4)L + AB^2M] \\
&+ \sin 2\omega/32 \; [-\sin 2\gamma \times A(L + 4B^2L - 15B^4L - BM) + 2\cos 2\gamma \times AB(3 - 5B^2)N] \\
&+ \cos 2\omega/32 \; [\;\cos 2\gamma \times \qquad + 2\sin 2\gamma \times \qquad] \\
&+ \sin 4\omega/16 \; [\;\sin 4\gamma \times A(L - 4B^2L - 3B^4L + B^2M) + 4\cos 4\gamma \times AB^3N] \\
&+ \cos 4\omega/16 \; [-\cos 4\gamma \times \qquad + 4\sin 4\gamma \times \qquad] \\
&+ \sin 6\omega/32 \; [\;\sin 6\gamma \times A(L + 4B^2L + B^4L - B^2M) - 2\cos 6\gamma \times AB(1 + B^2)N] \\
&+ \cos 6\omega/32 \; [-\cos 6\gamma \times \qquad - 2\sin 6\gamma \times \qquad]
\end{aligned}$$

$$\alpha_1\alpha_2\beta_1\beta_2 + \alpha_2\alpha_3\beta_2\beta_3 + \alpha_3\alpha_1\beta_3\beta_1 =$$
$$1/8 \quad [2AB^2 + 2L - 4B^2L + 2B^4L + \cos 2\gamma\; A + AB^2 + L + B^4L + B^2M)]$$
$$+\sin 2\omega/4 \quad [\quad \sin 2\gamma\; (AB^2 - L + B^4L) + (1 + \cos 2\gamma)ABN]$$
$$+\cos 4\omega/4 \quad [-(1+\cos 2\gamma)(\qquad\qquad) + \qquad \sin 2\gamma \qquad]$$
$$+\sin 4\omega/8 \quad [\quad \sin 2\gamma(A^2 - L - 4B^2L - B^4L + B^2M) + 2\cos 2\gamma \times B(1 + B^2)N]$$
$$+\cos 4\omega/8 \quad [-\cos 2\gamma(\qquad\qquad\qquad) + 2\sin 2\gamma \times \qquad\qquad]$$

$$\alpha_1\alpha_2\alpha_3^2\beta_1\beta_2 + \alpha_2\alpha_3\alpha_1^2\beta_2\beta_3 + \alpha_3\alpha_1\alpha_2^2\beta_3\beta_1 =$$
$$1/16 \quad [A(L - 8B^2L + 9B^4L + B^2M) + 2\cos 2\gamma \times A(L - 2B^2L + 3B^4L + B^2M)]$$
$$+\sin 2\omega/32 \quad [8\sin 2\gamma(-AB^2L + 3AB^4L) + \sin 4\gamma(-AL + AB^2M + 3AB^4L)$$
$$+(8 + 8\cos 2\gamma + 2\cos 4\gamma)ABN - 2(6 + 8\cos 2\gamma + \cos 4\gamma)AB^3N]$$
$$+\cos 2\omega/32 \quad [(2+\cos 4\gamma)A(L - B^2M) + (2+8\cos 2\gamma)AB^2L - 3(6+8\cos 2\gamma+\cos 4\gamma)AB^4L$$
$$+(8\sin 2\gamma + 2\sin 4\gamma)ABN - 2(8\sin 2\gamma + \sin 4\gamma)AB^3N]$$
$$+\sin 4\omega/16 \quad [\quad (2\sin 2\gamma+\sin 4\gamma)A(L - 4B^2L - 3B^4L+B^2M)+(8\cos 2\gamma+4\cos 4\gamma)AB^3N]$$
$$+\cos 4\omega/16 \quad [-(2\cos 2\gamma+\cos 4\gamma)A(\qquad\qquad\qquad) + (8\sin 2\gamma + 4\sin 4\gamma) \qquad]$$
$$+\sin 6\omega/32 \quad [\quad 3\sin 4\gamma(L + 4B^2L + B^4 \quad - B^2M)A - 6\cos 4\gamma(1 + B^2)ABN]$$
$$+\cos 6\omega/32 \quad [-3\cos 4\gamma(\qquad\qquad\qquad)A - 6\sin 4\gamma(\qquad) \qquad]$$

$$\alpha_1\alpha_2\alpha_3^4\beta_1\beta_2 + \alpha_2\alpha_3\alpha_1^4\beta_2\beta_3 + \alpha_3\alpha_1\alpha_2^4\beta_3\beta_1 =$$
$$1/128 \quad [4A(L+2B^2L - 13AB^2L+B^2P)+\cos 2\gamma(4L+8B^2L+7AB^2L+5AB^2M-B^2P+B^4P)A]$$
$$+\sin 2\omega/64 \quad [-2\sin 4\gamma(L - AB^2M - B^4P)A + (\sin 2\gamma + \sin 4\gamma)(A^2L - AB^2P)$$
$$+(21\sin 2\gamma - 3\sin 4\gamma)AB^2L - (33\sin 2\gamma - 7\sin 4\gamma)A^2B^2L$$
$$+(4 + 10\cos 2\gamma - 2\cos 4\gamma)ABN - (4 + 22\cos 2\gamma - 6\cos 4\gamma)AB^3N]$$
$$+\cos 2\omega/64 \quad [2\cos 4\gamma(L - AB^2M - B^4P)A + (2 - \cos 2\gamma - \cos 4\gamma)(A^2L - AB^2P)$$
$$-(6 + 21\cos 2\gamma - 3\cos 4\gamma)AB^2L + (6 + 33\cos 2\gamma - 7\cos 4\gamma)A^2B^2L$$
$$+(10\sin 2\gamma - 2\sin 4\gamma)ABN - (22\sin 2\gamma - 6\sin 4\gamma)AB^3N]$$
$$+\sin 4\omega/128 \quad [(5\sin 2\gamma - \sin 6\gamma)A(L + AB^2M + B^4P)$$
$$+(\sin 2\gamma + 4\sin 4\gamma - \sin 6\gamma)A(AL + B^2P)$$
$$-(35\sin 2\gamma + 20\sin 4\gamma - 11\sin 6\gamma)AB^2L$$
$$+(13\sin 2\gamma + 12\sin 4\gamma - 5\sin 6\gamma)A^2B^2L$$
$$+(24\cos 2\gamma + 16\cos 4\gamma - 8\cos 6\gamma)AB^3N]$$
$$+\cos 4\omega/128 \quad [-(5\cos 2\gamma - \cos 6\gamma)A(L + AB^2M + B^4P)$$
$$-(\cos 2\gamma + 4\cos 4\gamma - \cos 6\gamma)A(AL + B^2P)$$
$$+(35\cos 2\gamma + 20\cos 4\gamma - 11\cos 6\gamma)AB^2L$$
$$-(13\cos 2\gamma + 12\cos 4\gamma - 5\cos 6\gamma)A^2B^2L$$
$$+(24\sin 2\gamma + 16\sin 4\gamma - 8\sin 6\gamma)AB^3N]$$
$$+\sin 6\omega/64 \quad [2\sin 4\gamma(L - AB^2M - B^4P)A + (\sin 4\gamma - \sin 6\gamma)A(AL + B^4L - B^2P)$$
$$+(12\sin 4\gamma - 4\sin 6\gamma)AB^2L - (6\cos 4\gamma - 2\cos 6\gamma)AB(1 + B^2)N]$$
$$+\cos 6\omega/64 \quad [-2\cos 4\gamma(L - AB^2M - B^4P)A - (\cos 4\gamma - \cos 6\gamma)A(AL + B^4L - B^2P)$$
$$-(12\cos 4\gamma - 4\cos 6\gamma)AB^2L - (6\sin 4\gamma - 2\sin 6\gamma)AB(1 + B^2)N]$$
$$+\sin 8\omega/128 \quad [-\sin 6\gamma \times A^2B^2(L - M + P)]$$
$$+\cos 8\omega/128 \quad [\quad \cos 6\gamma \times A^2B^2(L - M + P)]$$

$$\alpha_1^3\alpha_2^3\beta_1\beta_2 + \alpha_2^3\alpha_3^3\beta_2\beta_3 + \alpha_3^3\alpha_1^3\beta_3\beta_1 =$$
$$1/128 \quad [24A^2B^2L + (20 - 56B^2 + 72B^4 - 56B^6 + 20B^8)L^2 + 20A^2B^4M + 12A^2B^2LM$$
$$+\cos 2\gamma(36A^2B^2L + 15L^2 - 24B^2L^2 - 36B^4L^2 - 24B^6L^2 + 15B^8L^2$$
$$+3A^2M + 15A^2B^4M + 1\cdot B^2LM - 24B^4LM + 18B^6LM + 3B^4S)]$$
$$+\sin 2\omega/64 \quad [(3\sin 2\gamma + 3\sin 4\gamma)B^2(2A^2L - LM + B^4LM)$$
$$-(15\sin 2\gamma + 3\sin 4\gamma)(L^2 - B^8L^2 - A^2B^4M)$$
$$+24\sin 2\gamma(1 - B^4)B^2L^2 - (6 + 3\cos 2\gamma + 3\cos 4\gamma)AB(AN - B^2R)$$
$$+(10 + 15\cos 2\gamma + 3\cos 4\gamma)B(A^2B^2N + LN - B^6LN)$$
$$-(24 + 42\cos 2\gamma + 6\cos 4\gamma)AB^3LN]$$

$$
\begin{aligned}
&+\cos 2\omega/64\ [-(6+3\cos 2\gamma+3\cos 4\gamma)B^2(2A^2L-LM+B^4LM)\\
&\qquad +(10+15\cos 2\gamma+3\cos 4\gamma)(L^2-B^8L^2-A^2B^4M)\\
&\qquad +(8-24\cos 2\gamma)(1-B^4)B^2L^2-(3\sin 2\gamma+3\sin 4\gamma)AB(AN-B^2R)\\
&\qquad +(15\sin 2\gamma+3\sin 4\gamma)B(A^2B^2N+LN-B^6LN)\\
&\qquad -(42\sin 2\gamma+6\sin 4\gamma)AB^3LN]\\
&+\sin 4\omega/128\ [(12\sin 2\gamma+12\sin 4\gamma)B^2(2A^2L+6B^2L^2+LM+B^4LM)\\
&\qquad -(15\sin 2\gamma+12\sin 4\gamma+\sin 6\gamma)(L^2+B^8L^2+A^2B^4M)\\
&\qquad -(36\sin 2\gamma+24\sin 4\gamma+4\sin 6\gamma)B^2(L^2+B^4L^2+B^2LM)\\
&\qquad +(\ 6\cos 2\gamma+2\cos 6\gamma)B(A^2N+B^2R+B^4R)\\
&\qquad -(30\cos 2\gamma+24\cos 4\gamma+\cos 6\gamma)B(A^2B^2N-LN-B^6LN)\\
&\qquad -(24\cos 2\gamma+24\cos 4\gamma)B^3(1+B^2)LN+(3\sin 2\gamma+\sin 6\gamma)(A^2M+B^4S)]\\
&+\cos 4\omega/128\ [-(12\cos 2\gamma+12\cos 4\gamma)B^2(2A^2L+6B^2L^2+LM+B^4LM)\\
&\qquad +(15\cos 2\gamma+12\cos 4\gamma+\cos 6\gamma)(L^2+B^8L^2+A^2B^4M)\\
&\qquad +(36\cos 2\gamma+24\cos 4\gamma+4\cos 6\gamma)B^2(L^2+B^4L^2+B^2LM)\\
&\qquad +(\ 6\sin 2\gamma+2\sin 6\gamma)B(A^2N+B^2R+B^4R)\\
&\qquad -(30\sin 2\gamma+24\sin 4\gamma+\sin 6\gamma)B(A^2B^2N-LN-B^6LN)\\
&\qquad -(24\sin 2\gamma+24\sin 4\gamma)B^3(1+B^2)LN-(3\cos 2\gamma+\cos 6\gamma)(A^2M+B^4S)]\\
&+\sin 6\omega/64\ [-(3\sin 4\gamma+\sin 6\gamma)K_1+(3\cos 4\gamma+\cos 6\gamma)K_2]\\
&+\cos 6\omega/64\ [+(\qquad\qquad\qquad\qquad)K_2+(\qquad\qquad\qquad\qquad)K_1]\\
&+\sin 8\omega/128\ [-\sin 6\gamma\times K_3-4\cos 6\gamma\times K_4]\\
&+\cos 8\omega/128\ [-4\sin 6\gamma\times K_4+\cos 6\gamma\times K_3]
\end{aligned}
$$

avec :

$$
\begin{aligned}
K_1&=6A^2B^2L+L^2+8B^2L^2-8B^6L^2-B^8L^2-A^2B^4M-3B^2LM+3B^6LM\\
K_2&=B(A^2N+3A^2B^2N+3LN+6B^2LN+6B^4LN-3B^6LN-AB^2R)\\
K_3&=L^2+B^2L(16L-12A^2+36B^2L+16B^4L+B^6L-6M)+A^2M+B^4M(A^2-16L-6B^2L)+B^4S\\
K_4&=A^2N+A^2B^2N-LN-6B^2LN-6B^4LN-B^6LN+B^2R+B^4R.
\end{aligned}
$$

Il faut d'ailleurs noter que l'intérêt de ces formules ne se limite pas au seul domaine de la magnétostriction. Elles s'appliquent immédiatement à d'autres études. Par exemple, la mesure de la résistivité électrique d'un monocristal ferromagnétique montre que celle-ci dépend de la direction de l'aimantation spontanée. Cette variation est très bien représentée par une relation du type précédent.

On peut appliquer ces formules générales aux cas particuliers les plus souvent étudiés. Les mesures sont faites en général dans un plan (001), dans un plan (110) ou dans un plan (111). D'autre part, nous avons vu qu'il est commode d'opérer en mesurant la variation de longueur entre deux états d'aimantation à saturation. On élimine ainsi l'incertitude sur l'état désaimanté initial. Pratiquement deux méthodes sont utilisées :

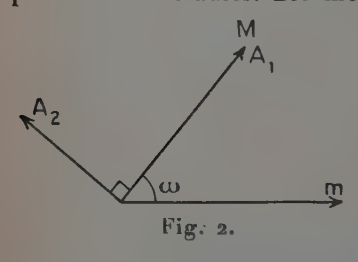


Fig. 2.

A. — La direction d'aimantation initiale A_1 coïncide avec la direction de mesure M (fig. 2). Puis l'échantillon est aimanté dans une direction perpendiculaire A_2. Dans l'état initial $\gamma=0$ et dans l'état final $\gamma=\frac{\pi}{2}$. ω reste la seule variable.

B. — L'état initial est le même que précédemment. L'échantillon est aimanté dans une direction A_2 faisant l'angle γ avec la direction M de mesure (fig. 3). ω garde la même valeur pour toutes les mesures. On prend de préférence une valeur simple $\omega = 0$ ou $\omega = \frac{\pi}{2}$ de façon à simplifier les expressions. On fait varier γ pour étudier λ_s en fonction de l'orientation.

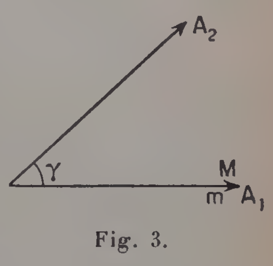


Fig. 3.

Ces deux méthodes ont leurs avantages et leurs inconvénients respectifs. Dans la deuxième, la direction de mesure reste toujours la même par rapport aux axes cristallins, alors que dans la première, elle varie. Cela entraîne pour la première une possibilité d'erreur supplémentaire sur l'estimation de ω, mais d'un autre côté, une erreur sur le repérage de la direction m de référence ne se traduira dans la première méthode que par une translation de la courbe, alors que dans la deuxième méthode, elle introduira des termes supplémentaires de périodicité différente.

On obtient ainsi pour le plan (001) :

$$\lambda_{\parallel} - \lambda_{\perp} = \frac{h_1}{2}(1 + \cos 4\omega) + \frac{h_2}{2}(1 + \cos 4\omega) + \frac{h_4}{32}(15 + 16 \cos 4\omega + \cos 8\omega) + \frac{h_7}{4}(1 - \cos 4\omega) + \frac{h_{10}}{64}(3 - 4 \cos 4\omega + \cos 8\omega)$$

$$\lambda_\gamma - \lambda_{100} = \frac{h_1}{2}(\cos 2\gamma - 1) + \frac{h_2}{8}(4 \cos 2\gamma + \cos 4\gamma - 5) + \frac{h_3}{8}(1 - \cos 4\gamma) + \frac{h_4}{32}(15 \cos 2\gamma + 6 \cos 4\gamma + \cos 6\gamma - 22) + \frac{h_5}{8}(3 \cos 4\gamma - 3).$$

Pour le plan (110) :

$$\lambda_{\parallel} - \lambda_{\perp} = \frac{h_1}{8}(3 - 2 \cos 2\omega + 3 \cos 4\omega) + \frac{h_2}{16}(5 - 6 \cos 2\omega + 5 \cos 4\omega)$$
$$+ \frac{h_3}{4} \cos 2\omega + \frac{h_4}{512}(135 - 210 \cos 2\omega + 144 \cos 4\omega - 28 \cos 6\omega + 18 \cos 8\omega)$$
$$+ \frac{h_5}{64}(-45 \cos 2\omega - 3 \cos 6\omega) + \frac{h_6}{64}(\cos 2\omega - \cos 6\omega)$$
$$+ \frac{h_7}{16}(5 + 2 \cos 2\gamma - 3 \cos 4\gamma) + \frac{h_8}{16}(1 - \cos 4\omega)$$
$$+ \frac{h_9}{128}(2 - \cos 2\omega - 2 \cos 4\omega + \cos 6\omega)$$
$$+ \frac{h_{10}}{1\,024}(39 + 30 \cos 2\omega - 16 \cos 4\omega + 2 \cos 6\omega + 9 \cos 8\omega)$$

$$\lambda_\gamma - \lambda_{00\bar{1}} = \frac{h_1}{2}(\cos 2\gamma - 1) + \frac{h_2}{8}(4 \cos 2\gamma + \cos 4\gamma - 5)$$
$$+ \frac{h_3}{32}(-4 \cos 2\gamma - 3 \cos 4\gamma - 7) + \frac{h_4}{32}(15 \cos 2\gamma + 6 \cos 4\gamma + \cos 6\gamma - 22)$$
$$+ \frac{h_5}{128}(45 \cos 2\gamma + 30 \cos 4\gamma + 3 \cos 6\gamma - 78)$$
$$+ \frac{h_6}{128}(-\cos 2\gamma - \cos 4\gamma + \cos 6\gamma + 1) + \frac{h_9}{256}(\cos 6\gamma - 1).$$

Pour le plan (111) :

$$\lambda_{\parallel} - \lambda_{\perp} = \frac{2}{3} h_1 + \frac{2}{9} h_2 + \frac{h_4}{64}(15 - \cos 6\omega) + \frac{h_5}{18}(-\cos 6\omega) + \frac{h_6}{54}(-\cos 6\omega)$$
$$+ \frac{h_7}{3} + \frac{h_8}{18} + \frac{h_9}{864}(23 + 8\cos 6\omega) + \frac{h_{10}}{864}(39 + 8\cos 6\omega)$$

$$\lambda_\gamma - \lambda_{1\bar{1}0} = \frac{h_1}{3}(\cos 2\gamma - 1) + \frac{h_2}{36}(4\cos 2\gamma - \cos 4\gamma - 3)$$
$$+ \frac{h_4}{216}(15\cos 2\gamma - 6\cos 4\gamma - 2\cos 6\gamma - 7) + \frac{h_5}{36}(1 - \cos 6\gamma)$$
$$+ \frac{h_6}{108}(1 - \cos 6\gamma) + \frac{h_7}{6}(\cos 2\gamma - 1) + \frac{h_8}{108}(3\cos 2\gamma - \cos 4\gamma - 2)$$
$$+ \frac{h_9}{1\,728}(23\cos 2\gamma - 24\cos 2\gamma + 8\cos 6\gamma - 7)$$
$$+ \frac{h_{10}}{1\,728}(39\cos 2\gamma + 24\cos 4\gamma + 8\cos 6\gamma - 71).$$

On peut remarquer qu'en utilisant successivement les deux méthodes de mesure sur un seul cristal (110), il est possible théoriquement de déterminer toutes les constantes h_i.

Effet de forme. — Le cas le plus simple est celui d'un échantillon polycristallin que l'on peut considérer comme isotrope. Il a été étudié par R. Becker [2] sous une forme un peu différente de celle que je présente. L'effet de forme a pour composantes :

$$s^F_{xx} = -\frac{1}{2G}\frac{\partial A^F}{\partial s_{xx}} + \frac{3K - 2G}{18KG}\left(\frac{\partial A^F}{\partial s_{xx}} + \frac{\partial A^F}{\partial s_{yy}} + \frac{\partial A^F}{\partial s_{zz}}\right)$$
$$s^F_{xy} = -\frac{1}{2G}\frac{\partial A^F}{\partial s_{xy}}$$

et les analogues.

L'échantillon étant aimanté suivant l'axe de révolution que je désigne par Oz, l'énergie de champ démagnétisant se réduit à :

$$A^F = \frac{1}{2}\frac{V}{V_0} N_z J_S^2.$$

D'où l'effet longitudinal :

$$s^F_{zz} = -\frac{1}{2}\frac{1}{2V_0}\left[VJ_S^2\frac{\partial N_z}{\partial s_{zz}} + N_z\frac{\partial(VJ_S^2)}{\partial s_{zz}}\right]$$
$$+ \frac{3K - 2G}{18KG}\frac{1}{2V_0}\left[VJ_S^2\left(\frac{\partial N_z}{\partial s_{xx}} + \frac{\partial N_z}{\partial s_{yy}} + \frac{\partial N_z}{\partial s_{zz}}\right)\right.$$
$$\left. + N_z\left(\frac{\partial(VJ_S^2)}{\partial s_{xx}} + \frac{\partial(VJ_S^2)}{\partial s_{yy}} + \frac{\partial(VJ_S^2)}{\partial s_{zz}}\right)\right].$$

Pour faire cette dérivation, il est nécessaire de faire une hypothèse sur la façon dont J_S varie avec la déformation. Pour expliquer les résultats expérimentaux de M. Kornetzki dans les champs éle-

vés, R. Becker a été amené à supposer que l'aimantation spontanée J_s dépend des s_{ik} seulement sous la forme :

$$VJ_s = V_0 J_s^0 [1 + \varepsilon(s_{xx} + s_{yy} + s_{zz})]$$

c'est-à-dire que J_s dépend seulement de la variation relative de volume :

$$\varpi = s_{xx} + s_{yy} + s_{zz}.$$

Pour un ellipsoïde de révolution allongé dont le demi-grand axe est a et le demi-petit axe b, en posant $m = \frac{a}{b}$, l'excentricité e est égale à $e = \sqrt{\frac{m^2 - 1}{m^2}}$ et le facteur démagnétisant dans la direction de l'axe de révolution est [19, 21] :

$$N_z = 4\pi \frac{1 - e^2}{e^2} \left[\frac{1}{2e} \operatorname{Log} \frac{1 + e}{1 - e} - 1\right].$$

D'où :

$$\frac{\partial N_z}{\partial s_{zz}} = \frac{dN_z}{de} \times \frac{\partial e}{\partial s_{zz}} = -\frac{2m^2 + 1}{m^2 - 1} N_z + \frac{4\pi}{m^2 - 1}.$$

Pour les dérivations $\frac{\partial N_z}{\partial s_{xx}}$ et $\frac{\partial N_z}{\partial s_{yy}}$, remarquons que l'ellipsoïde étant aimanté suivant son grand axe garde sa symétrie de révolution. s_{xx} et s_{yy} varient simultanément : $s_{xx} = s_{yy}$, et l'on a :

$$\frac{\partial N_z}{\partial s_{xx}} + \frac{\partial N_z}{\partial s_{yy}} = + \frac{2m^2 + 1}{m^2 - 1} N_z - \frac{4\pi}{m^2 - 1}.$$

On trouve évidemment :

$$\frac{\partial N_z}{\partial s_{xx}} + \frac{\partial N_z}{\partial s_{yy}} + \frac{\partial N_z}{\partial s_{zz}} = 0.$$

D'autre part, on obtient immédiatement :

$$\frac{\partial(VJ_s^2)}{\partial s_{zz}} = \frac{\partial(V^2 J_s^2/V)}{\partial s_{zz}} = \frac{\partial}{\partial s_{zz}} \left[\frac{V_0^2 J_s^{02}}{V_0(1 + \varpi)} (1 + \varepsilon\varpi)^2\right]$$
$$\simeq V_0 J_s^{02} \frac{\partial}{\partial s_{zz}} [1 - (1 - 2\varepsilon)\varpi] = - V_0 J_s^{02} (1 - 2\varepsilon)$$

et de même :

$$\frac{\partial(VJ_s^2)}{\partial s_{xx}} = \frac{\partial(VJ_s^2)}{\partial s_{yy}} = - V_0 J_s^{02} (1 - 2\varepsilon).$$

Finalement :

$$s_{zz}^F = + \frac{V}{V_0} \frac{J_s^2}{4G} \left(\frac{2m^2 + 1}{m^2 - 1} N_z - \frac{4\pi}{m^2 - 1}\right) + \frac{1}{6K} N_z J_s^{02} (1 - 2\varepsilon).$$

On trouve de même :

$$s^F_{xx} = s^F_{yy} = -\frac{V}{V_0}\frac{J_S^2}{4G}\left(\frac{2m^2+1}{m^2-1}N_z - \frac{4\pi}{m^2-1}\right) + \frac{1}{6K}N_zJ_S^{02}(1-2\varepsilon).$$

Le cas d'un monocristal est plus complexe. F. C. Powell [20] a indiqué une méthode pour traiter ce problème et a donné la solution dans le cas particulier où l'échantillon étant taillé en forme d'ellipsoïde de révolution, son axe de révolution coïncide avec un des axes cubiques du réseau, l'aimantation étant dans le plan équatorial. Powell pose qu'à l'énergie de champ démagnétisant $V_0\sum_{kl}N^0_{kl}J^0_kJ^0_l$ correspondant à l'ellipsoïde non déformé, s'ajoute par suite de la déformation un terme $V_0\Sigma\mu_{klrs}J^0_kJ^0_l s_{rs}$. Le terme μ_{klrs} se calcule par la formule :

$$\mu_{klrs} = \frac{\partial N_{kl}}{\partial s_{rs}}.$$

On voit que cela revient à écrire que l'énergie de champ démagnétisant est égale à :

$$A^F = \sum_k \frac{V_0}{2} J_k^{02}\left(N^0_k + \sum \frac{\partial N_k}{\partial s_{ij}} s_{ij}\right).$$

Cette façon de traiter le problème ne tient compte que de la variation du facteur démagnétisant, alors qu'en réalité le volume V et l'aimantation J_s sont susceptibles de varier et varient effectivement. On devrait donc écrire en sous entendant les sommations sur les indices :

$$A^F = \frac{1}{2}V_0N^0J^{02} + \frac{1}{2}N^0J^{02}\left(\frac{\partial V}{\partial s_{ij}}\right)s_{ij} + \frac{1}{2}V_0N^0\left(\frac{\partial J^2}{\partial s_{ij}}\right)s_{ij} + \frac{1}{2}V_0J^{02}\left(\frac{\partial N}{\partial s_{ij}}\right)s_{ij}$$

ce qui donne :

$$\frac{\partial A^F}{\partial s_{ij}} + \frac{1}{2}N^0J^{02}\frac{\partial V}{\partial s_{ij}} + \frac{1}{2}V_0N^0\frac{\partial J^2}{\partial s_{ij}} + \frac{1}{2}V_0J^{02}\frac{\partial N}{\partial s_{ij}}.$$

C'est l'expression que l'on peut écrire directement en prenant $A^F = \frac{1}{2}VNJ^2$ comme expression de l'énergie de champ démagnétisant.

L'échantillon monocristallin est toujours taillé en forme d'ellipsoïde de révolution aplati, et aimanté dans son plan équatorial. Soient Oz l'axe de révolution, Ox la direction d'aimantation, Oy la direction perpendiculaire dans le plan équatorial. J'appelle c, a, b,

$(a=b)$ les axes correspondants de l'ellipsoïde. Le facteur démagnétisant dans une direction quelconque du plan équatorial est [19, 21] :

$$N_x = 4\pi \frac{1}{2e^2}\left[e^2 - 1 + \frac{\sqrt{1-e^2}}{e} \text{Arc sin } e\right]$$

en posant :

$$e = \sqrt{1 - \frac{c^2}{a^2}}.$$

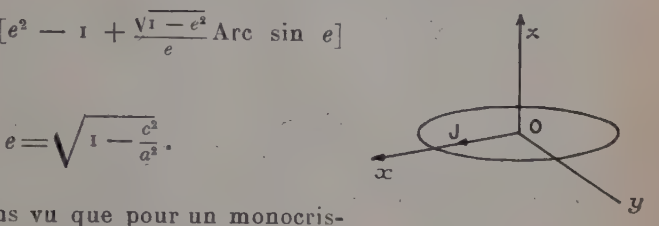


Fig. 4.

Nous avons vu que pour un monocristal, l'effet de forme est donné par :

$$s_{11}^F = -\frac{1}{2C_2}\frac{\partial A^F}{\partial s_{11}} + \frac{C_1}{2C_2(3C_1+2C_2)}\left[\frac{\partial A^F}{\partial s_{11}} + \frac{\partial A^F}{\partial s_{22}} + \frac{\partial A^F}{\partial s_{33}}\right]$$

et :

$$s_{12}^F = -\frac{1}{4C_3}\frac{\partial A^F}{\partial s_{12}}$$

avec dans le cas particulier étudié $A^F = \frac{1}{2}\frac{V}{V_0} N_x J_s^2$ d'où :

$$\begin{aligned} s_{11}^F = &-\frac{1}{2C_2}\frac{1}{2V_0}\left[VJ_s^2\frac{\partial N_x}{\partial s_{11}} + N_x\frac{\partial(VJ_s^2)}{\partial s_{11}}\right] \\ &+ \frac{C_1}{2C_2(3C_1+2C_2)}\frac{1}{2V_0}\left[VJ_s^2\left(\frac{\partial N_x}{\partial s_{11}} + \frac{\partial N_x}{\partial s_{22}} + \frac{\partial N_x}{\partial s_{33}}\right)\right. \\ &\left. + N_x\left(\frac{\partial(VJ_s^2)}{\partial s_{11}} + \frac{\partial(VJ_s^2)}{\partial s_{22}} + \frac{\partial(VJ_s^2)}{\partial s_{33}}\right)\right] \end{aligned}$$

$$s_{12}^F = -\frac{1}{4C_3}\frac{1}{2V_0}\left[VJ_s^2\frac{\partial N_x}{\partial s_{12}} + N_x\frac{\partial(VJ_s^2)}{\partial s_{12}}\right].$$

La dérivation de V par rapport à s_{11}, s_{22}, s_{33} n'offre pas de difficulté puisque V est seulement fonction de ϖ, quantité qui est invariante par rapport à un changement d'axes :

$$\varpi = s_{11} + s_{22} + s_{33} = s_{xx} + s_{yy} + s_{zz}.$$

Il en est de même pour la dérivation de J_s si l'on admet encore que J dépend seulement de ϖ par :

$$VJ_s = V_0 J_s^0 (1 + \varepsilon\varpi).$$

On trouve donc comme pour un polycristal :

$$\frac{\partial(VJ_s^2)}{\partial s_{11}} = \frac{\partial(VJ_s^2)}{\partial s_{22}} = \frac{\partial(VJ_s^2)}{\partial s_{33}} = -V_0 J_s^{02}(1 - 2\varepsilon).$$

Le calcul des dérivées de N_x est un peu plus complexe ; il n'est d'ailleurs possible que lorsque les déformations s_{11}^F, s_{22}^F, s_{33}^F, s_{12}^F, s_{23}^F, s_{31}^F

se traduisent uniquement par des déformations s^F_{xx}, s^F_{yy}, s^F_{zz}, de façon que l'ellipsoïde déformé par l'effet de forme reste un ellipsoïde. Cela est réalisé en particulier quand les axes $Oxyz$ sont des axes de symétrie d'ordre pair du réseau cubique.

Soit alors σ la matrice de transformation des coordonnées :

$$\left\{\begin{array}{l} \beta_1 = \sigma_{1x}\beta_x + \sigma_{1y}\beta_y + \sigma_{1z}\beta_z \\ \beta_2 = \sigma_{2x}\beta_x + \sigma_{2y}\beta_y + \sigma_{2z}\beta_z \\ \beta_3 = \sigma_{3x}\beta_x + \sigma_{3y}\beta_y + \sigma_{3z}\beta_z \end{array}\right.$$

Les s_{xx} en fonction des s_{11} s'obtiennent en écrivant que l'expression :

$$\frac{\Delta l}{l} = \Sigma s_{ij}\beta_i\beta_j$$

est invariante par rapport au changement de coordonnées.

On peut donc écrire :

$$\frac{\partial N_x}{\partial s_{11}} = \frac{\partial N_x}{\partial s_{xx}}\frac{\partial s_{xx}}{\partial s_{11}} + \frac{\partial N_x}{\partial s_{yy}}\frac{\partial s_{yy}}{\partial s_{11}} + \frac{\partial N_x}{\partial s_{zz}}\frac{\partial s_{zz}}{\partial s_{11}}$$
$$= \sigma^2_{1x}\frac{\partial N_x}{\partial s_{xx}} + \sigma^2_{1y}\frac{\partial N_x}{\partial s_{yy}} + \sigma^2_{1z}\frac{\partial N_x}{\partial s_{zz}}.$$

F. C. Powell [20] a calculé la dérivée $\frac{\partial N_x}{\partial s_{xx}}$:

$$\frac{\partial N_x}{\partial s_{xx}} = \frac{3\pi}{2e^4}\left[(1 - e^2)(3 + 2e^2) - \frac{3}{2}\sqrt{1 - e^2}\ \text{Arc sin } e\right].$$

Or :

$$\frac{\partial N_x}{\partial s_{xx}} + \frac{\partial N_x}{\partial s_{yy}} + \frac{\partial N_x}{\partial s_{zz}} = 0 \qquad \text{(I-4)}$$

puisqu'une dilatation isotrope ne change pas les coefficients démagnétisants d'un ellipsoïde.

$\frac{\partial N_x}{\partial s_{zz}}$ peut se calculer facilement :

$$\frac{\partial N_x}{\partial s_{zz}} = -\frac{4(1 - e^2)}{e^2}N_x + \frac{4\pi(1 - e^2)}{e^3}\left[2e + \frac{1}{e} - \frac{e^2 + 1}{e^2\sqrt{1 - e^2}}\ \text{Arc sin } e\right].$$

On tire de (I-4) :

$$\frac{\partial N_x}{\partial s_{yy}} = -\left(\frac{\partial N_x}{\partial s_{xx}} + \frac{\partial N_x}{\partial s_{zz}}\right)$$
$$= \frac{4(1 - e^2)}{e^2}N_x - \frac{\pi(1 - e^2)(14e^2 + 13)}{2e^4} + \frac{(8e^2 + 17)\pi\sqrt{1 - e^2}}{2e^5}\ \text{Arc sin } e.$$

Nous avons donc maintenant tous les éléments pour calculer la dérivée $\frac{\partial N_x}{\partial s_{11}}$. Les autres dérivées de N_x se calculent d'une façon identique. On a d'ailleurs :

$$\frac{\partial N_x}{\partial s_{11}} + \frac{\partial N_x}{\partial s_{22}} + \frac{\partial N_x}{\partial s_{33}} = 0.$$

Magnétostriction contrainte. — D'après ce que l'on sait des mécanismes élémentaires de l'aimantation, on pourrait logiquement attendre que lorsque la saturation est atteinte, $\vec{J_s}$ étant partout dans la direction du champ magnétisant, le réseau cristallin conserve une déformation fixe, le champ continuant à croître. Or, l'expérience montre, d'une façon très générale, que dans le domaine de la saturation, on peut observer un effet proportionnel au champ. La figure 5 représente les mesures de M. Kornetzki [15] sur le fer. Les deux courbes $\frac{\Delta l}{l}$ (H) et $\frac{1}{3}\varpi$ (H) montrent dans les champs élevés une croissance parallèle.

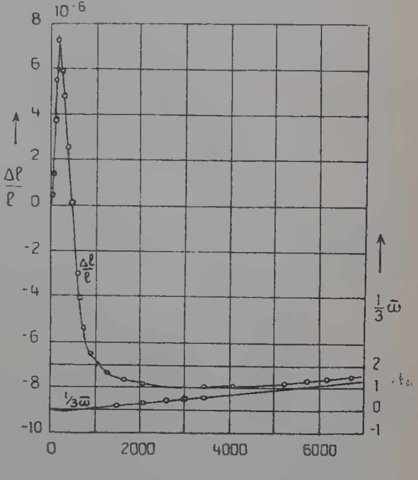


Fig. 5.

L'effet longitudinal trouvé est le tiers de l'effet de volume, ce qui peut s'interpréter très simplement en admettant qu'il s'agit d'un phénomène isotrope. C'est pour rendre compte de cet effet que R. Becker a supposé que l'aimantation spontanée était fonction des déformations sous la forme :

$$VJ_S = V_0 J_S (1 + \varepsilon\varpi).$$

La déformation due à l'action du champ est alors donnée par :

$$s_{zz}^{H} = + \frac{1}{2G} \frac{\partial W^H}{\partial s_{zz}} - \frac{3K - 2G}{18KG} \left(\frac{\partial W^H}{\partial s_{xx}} + \frac{\partial W^H}{\partial s_{yy}} + \frac{\partial W^H}{\partial s_{zz}} \right)$$

avec :

$$\frac{\partial W^H}{\partial s_{xx}} = \frac{\partial W^H}{\partial s_{yy}} = \frac{\partial W^H}{\partial s_{zz}} = \frac{1}{V_0} \frac{\partial(VHJ)}{\partial s_{xx}} = HJ_S^0 \varepsilon$$

d'où :

$$s_{xx}^{H} = s_{yy}^{H} = s_{zz}^{H} = \frac{1}{2G} HJ_S^0 \varepsilon - \frac{3K - 2G}{18KG} (3HJ_S^0 \varepsilon) = \frac{1}{3K} HJ_S^0 \varepsilon.$$

Nous pouvons d'ailleurs grouper les termes de s^F et de s^H dépendant de la constante ε. Par exemple, pour un polycristal, nous écrirons :

$$s_{zz}^{F} + s_{zz}^{H} = \frac{V_0}{V} \frac{J_S^2}{4G} \left(\frac{2m^2 + 1}{m^2 - 1} N - \frac{4\pi}{m^2 - 1} \right) + \frac{1}{6K} N_z J_S^{02} (1 - 2\varepsilon) + \frac{1}{3K} HJ_S^0 \varepsilon$$

$$= \frac{V}{V_0} \frac{J_S^2}{4G} \left(\frac{2m^2 + 1}{m^2 - 1} N_z - \frac{4\pi}{m^2 - 1} \right) + \frac{1}{6K} N_z J_S^{02} + (H - N_z J_S^0) \frac{J_S^0 \varepsilon}{K3}. \quad \text{(I-5)}$$

Sous cette forme, le rôle du champ intérieur H — NJ est mis en évidence, et les corrections d'effet de forme et d'effet de champ sont plus faciles à faire. Soit par exemple la courbe OAB obtenue expérimentalement. La correction correspondant au troisième terme de l'équation (I-5) est faite en prolongeant la partie rectiligne AB jusqu'à son intersection C avec la verticale menée par la valeur $H = NJ_s$. Il suffit de retrancher ensuite de la valeur λ_1 ainsi obtenue, la valeur des deux premiers termes de l'équation (I-5) pour obtenir la magnétostriction spontanée.

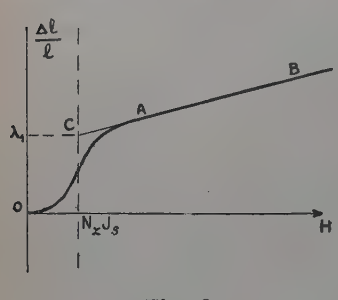


Fig. 6.

Toutefois, le fait qu'un champ magnétique agissant sur un matériau puisse produire une dilatation isotrope n'est pas sans surprendre. Au premier examen, il semblerait logique d'attendre un effet anisotrope. L'interprétation de Becker, selon laquelle la magnétostriction contrainte est liée à une augmentation de l'aimantation spontanée paraît plus satisfaisante, si l'on se souvient [9 et 18] que la magnétostriction spontanée est elle-même pour la plus grande partie un effet isotrope. Mais il est alors contradictoire que pour le fer par exemple, et selon les mesures mêmes de Kornetzki, la magnétostriction contrainte soit une dilatation, alors que l'anomalie de longueur est une contraction.

Il semble donc indispensable, avant de chercher d'autres explications, de vérifier s'il s'agit véritablement d'un effet isotrope. Il paraît naturel pour cela d'étudier ce phénomène sur des monocristaux. Il sera alors facile de voir comment il varie avec la direction. C'est le but essentiel des mesures que j'ai effectuées sur des monocristaux de fer et de nickel.

DEUXIÈME PARTIE

APPAREILLAGE DE MESURE

En ce qui concerne le dispositif de mesure proprement dit, j'ai surtout cherché à obtenir :

1° Une sensibilité très élevée.

2° Une précision absolue suffisante.

J'ai utilisé une amplification optique par la méthode du miroir tournant, précédée d'une amplification mécanique. Cette méthode se prête particulièrement bien à l'obtention d'une sensibilité élevée, et

à un étalonnage en valeur absolue. Elle présente de plus une grande fidélité et les résultats sont très bien reproductibles. Les causes de déréglages et d'erreurs accidentelles y sont réduites au minimum. Elle présente également beaucoup d'avantages accessoires :

L'allure du phénomène est directement et immédiatement visible.

La réalisation que j'ai utilisée permet facilement de mesurer des effets dont l'ordre de grandeur est très différent.

Les mesures peuvent s'exécuter à des températures différentes de la température ordinaire.

Le même appareillage peut être utilisé pour des mesures de nature voisine. Il a servi effectivement à des études de dilatométrie thermique.

Amplificateur mécanique. — L'amplificateur mécanique est réalisé au moyen d'un levier L mobile autour d'un axe horizontal. L'axe de rotation est défini sans aucun jeu par un système de quatre lames ressorts *l* perpendiculaires deux à deux schématisé sur la figure 7.

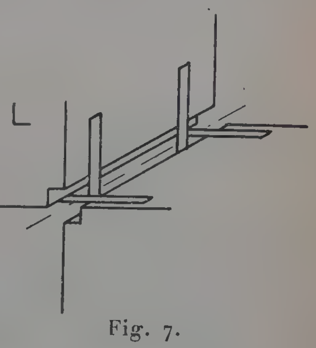


Fig. 7.

Les figures 8 et 9 indiquent les détails de montage. L'échantillon E est placé dans un tube vertical en quartz. Dans ce tube coulisse librement une tige, également en quartz, qui transmet les variations de longueur de l'échantillon au levier L. L'extrémité plane de la tige appuie sur l'arête d'un couteau en agate C solidaire du levier L. Un deuxième couteau en agate C fixé sur L appuie sur le chariot mobile A dont l'extrémité en contact avec C est recouverte d'une lame de verre. Le chariot A roule sur deux aiguilles dont l'une porte un miroir M. Des ressorts *r* exercent les forces nécessaires pour que les liaisons mécaniques se comportent comme des liaisons bilatérales. Le chemin de roulement des aiguilles est constitué par une pièce B que l'on peut déplacer à l'aide de la vis V. Il est ainsi possible de régler l'orientation initiale du miroir M. Pour que le roulement des aiguilles soit le mieux défini possible, les parties centrales des pièces A et B sont évidées. Les aiguilles ne portent ainsi que sur des parties latérales assez étroites. L'aiguille sur laquelle est fixée le miroir est munie à l'autre extrémité d'un contrepoids portant des vis de réglages, qui permettent d'équilibrer à la fois le poids du miroir par rapport aux

Fig. 8.

Fig. 9.

chemins de roulement, et le moment du miroir par rapport à l'axe de l'aiguille.

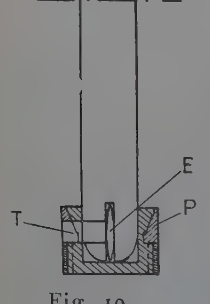


Fig. 10.

Pour les monocristaux, une variante du montage a été réalisée (fig. 10). Le monocristal est taillé en forme d'ellipsoïde de révolution aplati de 10 mm de diamètre équatorial et d'épaisseur 0,5 à 1 mm. L'extrémité fermée d'un tube de quartz a été fendue dans le sens de la longueur de façon à constituer un logement pour le cristal disposé verticalement. Celui-ci est maintenu en place au moyen d'une pince cylindrique en laiton P. Un orifice T dans le tube de quartz et dans la pince permet de repérer l'orientation du cristal.

Le pouvoir amplificateur du levier a été déterminé en mesurant au comparateur les distances entre les arêtes des couteaux et les plans

d'appui des lames l sur le levier L. Les moyennes de mesures dont les écarts maximums sont 0,01 mm donnent (fig. 11).

$$d_1 = 7{,}000 \text{ mm.}$$
$$d_2 = 49{,}132 \text{ mm.}$$

En tenant compte de l'épaisseur des lames l ($e = 0{,}05$ mm), le coefficient d'amplification du levier est :

$$k = \frac{49{,}132 + 0{,}025}{7{,}000 + 0{,}025} = 6{,}997.$$

Les deux aiguilles que j'ai finalement utilisées ont l'une un diamètre de 0,691 mm, l'autre un diamètre de 0,695 mm constant à $\pm$ 0,002 mm.

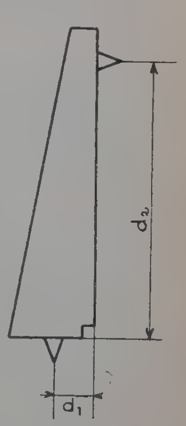


Fig. 11.

Amplificateur optique. — Pour déterminer l'angle de rotation du miroir, un objectif achromatique O (fig. 12) donne d'un objet m une image réelle, qui, par suite

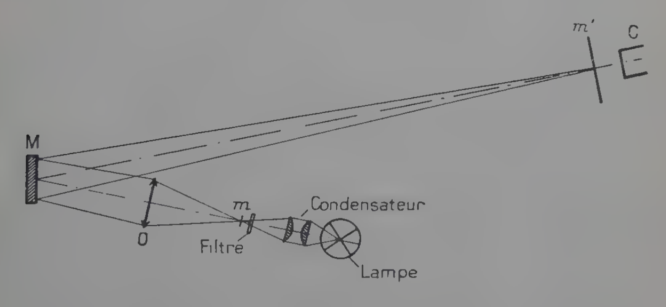


Fig. 12.

de la réflexion des rayons lumineux sur le miroir M, se forme en m'. Cette image est observée avec le comparateur C.

L'étude des conditions conduisant à la sensibilité maximum, fondée sur les lois de l'optique géométrique et sur celles de la diffraction, doit tenir compte de nombreux facteurs : distance du miroir M au comparateur C, distance focale, ouverture et définition de l'objectif O, définition de l'objet m, qualité, dimensions et poids du miroir mobile M. J'ai utilisé en dernier lieu un objectif de lunette de distance

focale voisine de 17 cm, de diamètre 4,1 cm. Son ouverture numérique dans les conditions d'emploi est $\sin u = 0{,}114$, la distance Mm' étant de l'ordre de 2 m et le grandissement linéaire voisin de 13.

Dispositifs d'aimantation. — Pour la plupart des expériences, l'aimantation de l'échantillon dans la direction de mesure était obtenue au moyen d'une bobine sans fer dont les caractéristiques sont les suivantes :

Elle comporte 1 208 spires en fil de cuivre émaillé de 1,3 mm de diamètre, réparties en 28 couches. Chaque couche est bobinée à spires jointives et séparée des couches voisines par des fils de nylon de 0,4 mm tendus parallèlement à l'axe de la bobine. Ces fils de nylon ont pour but, d'une part d'isoler électriquement les couches les unes des autres, d'autre part de ménager entre deux couches successives un espace annulaire permettant le passage de l'eau de refroidissement.

Une disposition analogue a déjà souvent été utilisée [10], mais jusqu'à présent le bobinage était réalisé en métal nu, ce qui obligeait à utiliser comme fluide de refroidissement de l'eau suffisamment dépourvue de sels pour éviter les effets d'électrolyse. L'émail recouvrant le fil permet d'utiliser l'eau de la ville comme liquide de refroidissement sans avoir à craindre ces effets. Il diminue dans une forte proportion les échanges thermiques, mais ceux-ci sont encore largement suffisants pour assurer un refroidissement correct avec les puissances employées et les durées d'utilisation.

Les surfaces métalliques intérieures de la bobine sont recouvertes d'un vernis isolant cuit en étuve.

La résistance de la bobine est voisine de 3,6 Ω. Son alimentation sur la distribution de courant continu à 220 V permet d'obtenir un champ de 7 000 Oe, uniforme à moins de 0,5 o/o dans un volume de 1 cm^3 avec une puissance dissipée de l'ordre de 12 kilowatts.

Dans le cas des ferrites de cobalt qui sont des substances magnétiquement très dures, un champ magnétisant de 7 000 Oe est souvent insuffisant pour approcher de la saturation. J'ai donc prévu et utilisé pour ces mesures un circuit magnétique en fer très doux qui, monté sur la bobine précédente, fournit dans les mêmes conditions un champ de 12 000 Oe.

Pour l'étude de la magnétostriction transversale, l'échantillon doit être aimanté horizontalement. J'ai réalisé dans ce but un petit électro-aimant pouvant être monté sur le banc de mesure à la place de la bobine précédente. Avec un entrefer de 3 cm, le champ au centre de l'entrefer peut atteindre la valeur maximum de 7 500 Oe.

Montage de l'ensemble. — L'ensemble du dilatomètre, du montage optique avec le comparateur et de la bobine d'aimantation est porté par un banc en chêne dont la figure 13 indique la forme et les dimensions.

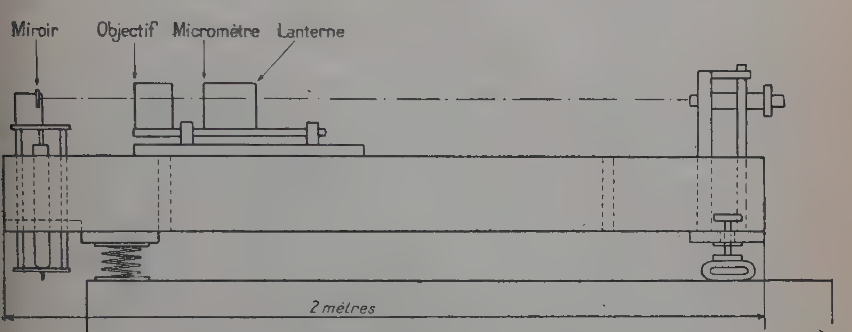


Fig. 13.

L'extrémité du banc où se trouve l'appareil de dilatométrie est monté sur deux ressorts en bronze non magnétique calculés et construits spécialement. La période des oscillations libres du banc est de l'ordre de la demi-seconde. Elle est assez grande pour que les vibrations parasites de fréquences plus élevées ne soient pratiquement pas transmises. Aucun dispositif d'amortissement n'est ajouté. Les tuyaux en caoutchouc assurant la circulation de l'eau de refroidissement et les liaisons électriques souples suffisent pour amortir rapidement les oscillations accidentelles. A l'autre extrémité du banc, où se trouve le comparateur qui doit être manipulé en cours de mesure, un amortissement plus fort est nécessaire. La supension est constituée par deux morceaux de gros tube de caoutchouc de 8 cm de diamètre, comprimés suivant un diamètre.

Sensibilité de l'appareil. — Δl est donné par la relation :

$$\Delta l = \frac{x}{2D} \times d \times \frac{1}{k} \qquad \left\{ \begin{array}{l} x = \text{déplacement de } m', \\ D = \text{distance } Mm', \\ d = \text{diamètre de l'aiguille}, \\ k = \text{amplification mécanique.} \end{array} \right.$$

Supposons la distance Mm' égale à 2 m. Les pointés au comparateur sont faits à 1/100 de millimètre. La plus petite variation de longueur perceptible est donc :

$$\Delta l = \frac{10^{-3} \times 0{,}0695}{200 \times 2 \times 6{,}997} = 0{,}248_2 . 10^{-7} \text{ ou } 2{,}48 \text{ Å}.$$

Pour un échantillon de longueur 1 cm., cela correspond à une variation de longueur relative égale à $2{,}48 . 10^{-8}$.

Pour une mesure de Δl les deux pointés entraînent donc une incertitude absolue de 5 Å. Il s'y ajoute une incertitude relative donnée par :

$$\frac{\delta(\Delta l)}{\Delta l} = \frac{\delta D}{D} + \frac{\delta d}{d} + \frac{\delta k}{k} \simeq \frac{1}{2\,000} + \frac{2}{700} + \frac{1}{1\,000} \simeq \frac{5}{1\,000}.$$

Dans l'évaluation de $\lambda = \frac{\Delta l}{l}$, on doit encore tenir compte de l'incertitude sur la valeur de l. Mais quand on compare les mesures faites sur le même échantillon ou sur des échantillons différents, les quantités D, d et k doivent être regardées comme constantes.

La cause d'erreur qui paraît être la plus gênante dans tous les systèmes de mesure de la magnétostriction est la variation de température de l'échantillon pendant la durée d'une mesure. Cette variation de température est due à plusieurs causes dont la première est la variation de la température ambiante lorsque les mesures sont faites à cette température. Avec un appareil très sensible, cet effet est très visible lorsque l'échantillon est dans l'air. Une stabilité suffisante est obtenue lorsque le tube de quartz contenant l'échantillon est placé dans un dewar contenant un liquide de chaleur spécifique assez grande.

Je crois qu'en ce qui concerne la mesure de l'effet longitudinal, l'influence de l'effet magnétocalorique a été beaucoup exagérée. Si l'on se reporte en effet à la publication originale de P. Weiss et R. Forrer concernant le nickel [25], on constate qu'à la température ambiante, pour un champ de 5 000 Oe, l'effet magnétocalorique est de l'ordre de 0°004, et qu'il atteint 0°012 pour un champ de 10 000 Oe. En prenant $13,5.10^{-6}$ comme coefficient de dilatation linéaire du nickel, on trouve que les variations relatives de longueur correspondantes sont respectivement $5,4.10^{-8}$ et 16.10^{-8}.

TROISIÈME PARTIE

ÉTUDE DES MONOCRISTAUX DE FER ET DE NICKEL

Préparation des monocristaux. — Je dois le cristal de nickel que j'ai utilisé à la très grande obligeance de M. R. M. Bozorth des Bell Telephone Laboratories. Après repérage de son orientation aux rayons X, j'en ai extrait un ellipsoïde de révolution aplati dont le plan équatorial est un plan (110). Cette orientation est particulièrement intéressante parce que contenant les trois directions [001], [110] et [111]. Cet ellipsoïde a été taillé en laissant une surépaisseur générale de 0,1 mm avec l'outillage spécialisé des bijoutiers, scies et

limes à denture très fine, de façon à réduire au minimum l'écrouissage du métal. Cette ébauche obtenue, j'ai enlevé la surépaisseur par polissage électrolytique en utilisant une méthode au tampon inspirée des procédés Dalic ([1]).

L'ellipsoïde terminé avait un diamètre de 10,15 mm ($10{,}14 < \varnothing < 10{,}17$) et une épaisseur de 1,00 mm.

M. le professeur Lacombe avait bien voulu se charger de la préparation de monocristaux de fer pur. Il s'agit d'échantillons préparés par la méthode de l'écrouissage critique qui fournit des lames de fer de 0,5 à 1 mm d'épaisseur, formées de plusieurs gros cristaux. J'ai étudié un spécimen que j'ai taillé en forme d'ellipsoïde de révolution aplati de diamètre 10 mm et d'épaisseur 0,5 mm par une méthode analogue à celle utilisée pour le cristal de nickel. Son orientation est très voisine du plan (101). Elle est indiquée exactement par la figure 14, O*n* étant la normale au plan équatorial du cristal.

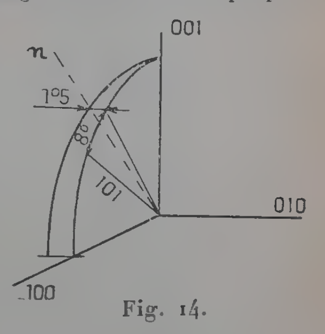


Fig. 14.

Dans le but de vérifier si un défaut de forme pouvait produire une erreur sensible, j'ai également étudié un échantillon pris dans le même cristal et ayant par conséquent la même orientation, mais taillé simplement en forme de disque de 10 mm de diamètre et 0,5 mm d'épaisseur.

Etude de la magnétostriction contrainte. — Le premier but des mesures que j'ai effectuées sur les monocristaux était l'étude de la magnétostriction contrainte dans les champs élevés. La figure 15 représente l'effet longitudinal $\lambda(H)$ obtenu pour différentes orientations du cristal de nickel. La direction de référence est l'axe [001]. Le premier fait constaté est que pour des valeurs du champ supérieures à 2 000 Oe environ, l'existence d'une variation de longueur proportionnelle à la variation du champ est confirmée. Cet effet dans le cas du nickel est faible et semble varier peu avec la direction, sans toutefois être isotrope vis-à-vis de la direction du champ. Mais sur la figure 16 qui représente l'effet transversal pour quelques directions du même cristal de nickel, on voit que dans une direction perpendiculaire à celle du champ, une croissance du champ provoque une diminution de longueur. Par conséquent, la magnétostriction

([1]) M. I. Epelboin a eu l'amabilité de m'initier aux techniques du polissage électrolytique.

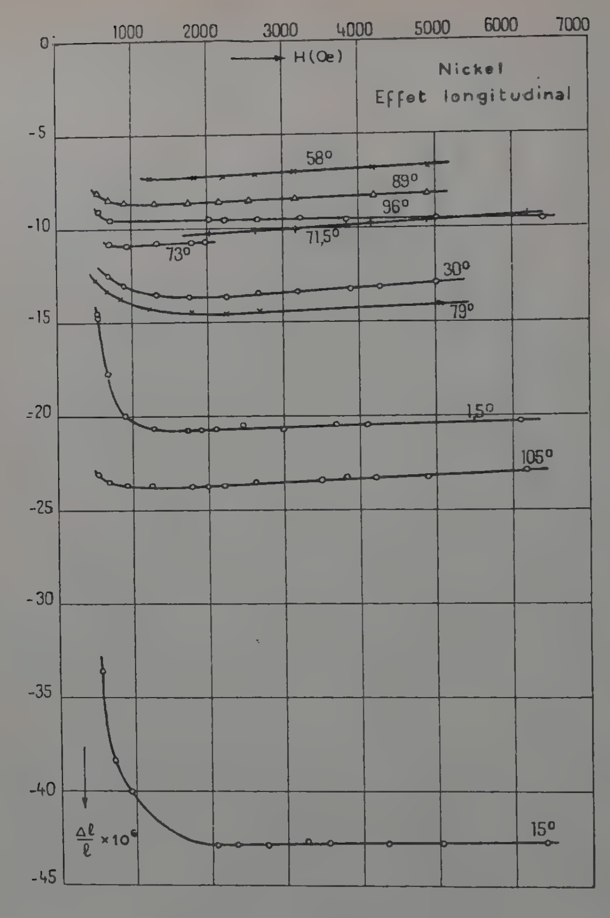


Fig. 15.

contrainte ne consiste pas en une dilatation isotrope. Les mesures faites sur le fer confirment entièrement ces résultats. Les figures 17 et 18 représentent respectivement l'effet longitudinal mesuré sur l'ellipsoïde et sur le disque de fer. La direction de référence est l'intersection du plan équatorial avec le plan (010). On constate une variation considérable de l'allure de la courbe suivant la direction. Pour certaines directions, la courbe $\lambda(H)$ traduit dans les champs élevés une croissance extraordinairement rapide et qui n'a jamais été

signalée. La figure 19 représente pour quelques orientations l'effet transversal mesuré sur les échantillons recuits dans l'hydrogène. Cet effet transversal a été trouvé toujours négatif.

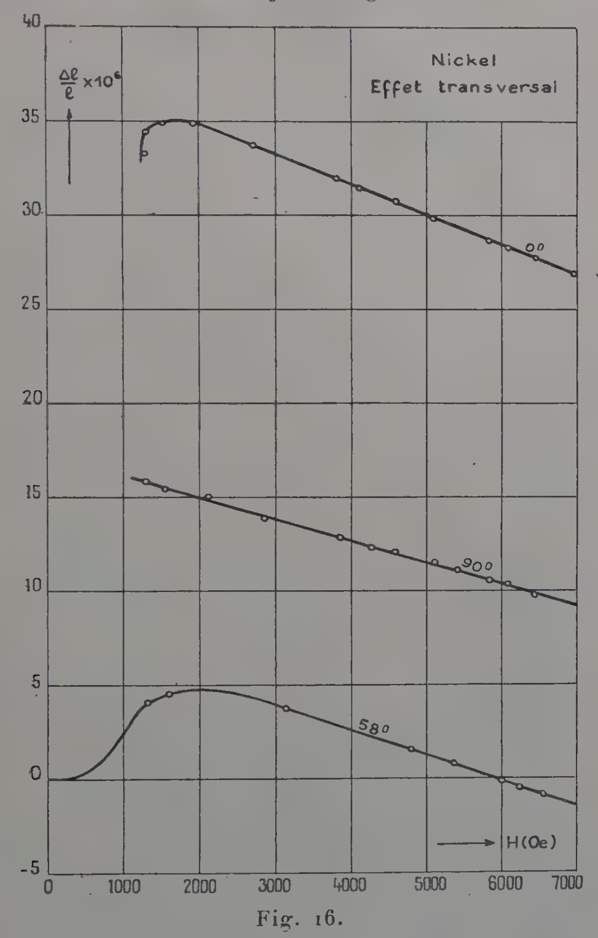


Fig. 16.

La conclusion est donc indiscutable. L'effet de magnétostriction contrainte dépend à la fois de l'orientation du matériau et de l'orientation de la direction de mesure par rapport à la direction du champ. On ne peut donc pas admettre qu'il correspond à une variation de l'aimantation spontanée traduite par la loi simple :

$$VJ_s = V_0 J_s^0 (1 + \varepsilon\varpi).$$

Si l'on veut toujours la regarder comme liée à l'augmentation de l'aimantation spontanée, il faut introduire une loi plus compli-

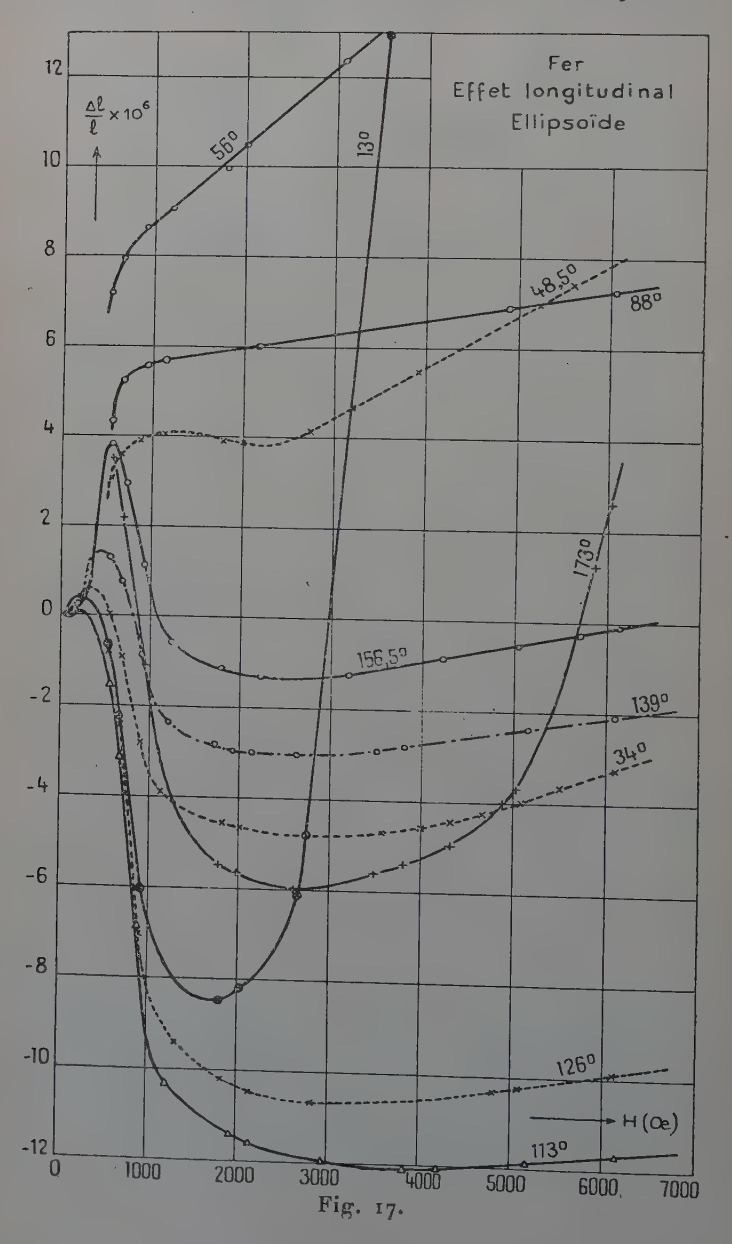


Fig. 17.

quée. On peut par exemple utiliser une relation tensorielle de la forme :

$$VJ_i = V_0 J_i^0 (1 + \sum_{jk} \varepsilon_{ijk} s_{jk}).$$

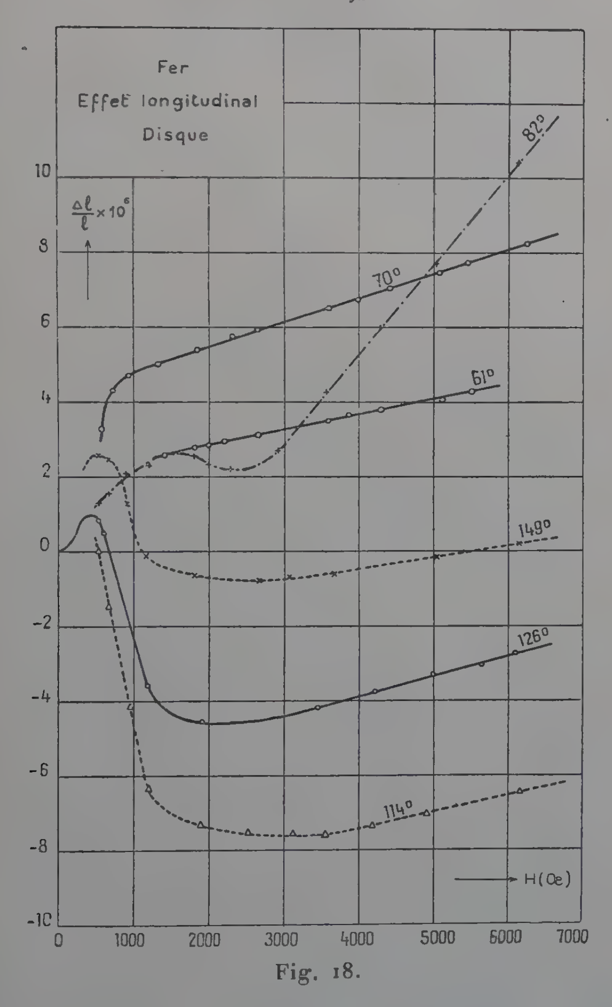


Fig. 18.

Toutefois cette formule serait peut-être insuffisante pour traduire convenablement les résultats expérimentaux. Il semble préférable d'adopter une représentation empirique calquée sur la relation (I-3) et qui pourrait exprimer dans tous les cas la pente de la partie rectiligne des courbes $\lambda(H)$ en fonction des cosinus directeurs α_i de la

direction d'aimantation et des cosinus directeurs β_i de la direction de mesure. Mais il faut faire une remarque importante. Dans le domaine de la saturation où l'étude expérimentale est faite, la direction de

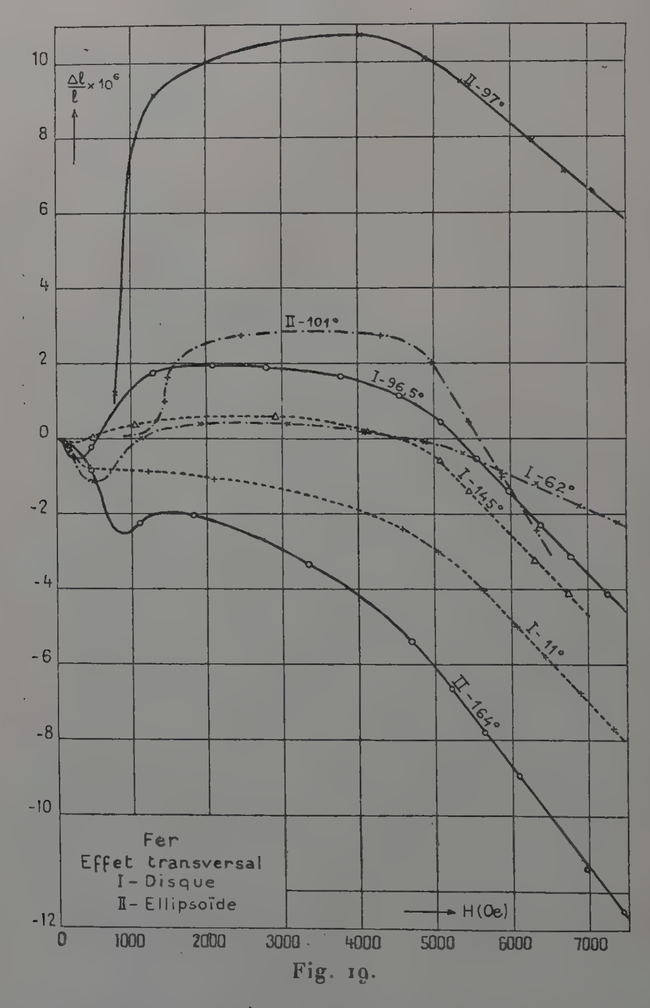


Fig. 19.

l'aimantation spontanée $\overrightarrow{J_s}$ coïncide avec la direction du champ magnétisant $\overrightarrow{H}$. La variation de $\frac{d\lambda}{dH}$ avec l'orientation constatée doit-elle être rapportée à la direction de l'aimantation spontanée ou à celle du champ ? Autrement dit, est-ce que la magnétostriction contrainte doit être attribuée à la variation de l'aimantation spontanée, ou à la

variation du champ ? Il est nécessaire de préciser ce point si l'on veut justifier l'extrapolation qui permet de faire la correction de magnétostriction contrainte.

D'un point de vue purement théorique, il serait peut-être plus satisfaisant pour l'esprit d'attribuer la magnétostriction contrainte à la variation de l'aimantation spontanée, mais il semble que la plupart des faits constatés sont en faveur de l'autre hypothèse.

D'abord la variation de la magnétostriction contrainte en fonction du champ suit une loi très simple puisque les variations sont proportionnelles. C'est un argument pour admettre que ces variations sont liées directement. Au contraire, la variation expérimentale de l'aimantation en fonction du champ, donc aussi en fonction de la déformation, fait toujours ressortir une loi plus compliquée en $\left(1-\frac{a}{H}\right)$ ou $\left(1-\frac{b}{H^2}\right)$. En particulier, des mesures de contrôle faites dans la direction [111] sur le monocristal de nickel que j'ai étudié s'interprètent au mieux par une loi d'approche en $\frac{a}{H}$. D'autre part, si l'on considère le nickel par exemple, la déformation du réseau due à l'aimantation spontanée [18] est négative dans toutes les directions. Il est difficile de concevoir qu'une augmentation de l'aimantation spontanée puisse produire un effet positif. Enfin comment expliquer que dans la plupart des cas, la magnétostriction contrainte est fortement anisotrope alors que pour la déformation spontanée du réseau, la partie anisotrope est très faible vis-à-vis de la partie isotrope. Et si l'on ne considère que les parties anisotropes, il y a une différence d'ordre de grandeur incompréhensible entre leur variation et la variation de J_s.

Ainsi, quoiqu'une variation de l'aimantation spontanée soit démontrée par l'existence de l'effet magnétocalorique, et étant donné son ordre de grandeur très faible à la température ordinaire pour les matériaux qui comme le fer ou le nickel ont un point de Curie élevé, il semble justifié de négliger, dans l'état actuel des connaissances, la variation de la quantité VJ_s, et de considérer que le champ magnétique est la cause unique de la magnétostriction contrainte.

La correction de magnétostriction contrainte dans une direction déterminée est alors très simple à évaluer. Il suffit, comme dans l'hypothèse de R. Becker, d'extrapoler la partie rectiligne de la courbe $\lambda(H)$ jusqu'à la valeur nulle du champ interne. Il n'en serait pas de même dans le cas de la première hypothèse, car dans le domaine des déplacements de parois et des rotations, la répartition de $\vec{J_s}$ en direction est inconnue, et l'extrapolation ne serait pas justifiée.

Finalement, il semble donc préférable de représenter :

a) la magnétostriction spontanée par la relation (I-3) ;

b) la magnétostriction contrainte par une relation analogue en

remplaçant les cosinus directeurs de $\vec{J_s}$ par ceux de $\vec{H}$, cette relation donnant la pente de la partie rectiligne de la courbe $\lambda(H)$;

c) l'effet de forme étant calculé comme il a été indiqué dans la première partie, mais en admettant que la quantité VJ_s est indépendante des déformations.

Etude de la magnétostriction spontanée. — Ayant à ma disposition des monocristaux, j'ai voulu essayer d'étudier la magnétostriction spontanée en mesurant $\Delta l/l$ suivant une direction verticale, l'échantillon étant aimanté successivement dans la même direction, puis horizontalement. Pour cela, j'avais disposé mon matériel avec la bobine d'aimantation entre les pôles de la maquette de l'électro-aimant de Bellevue. La bobine fournissait un champ vertical, l'électro un champ horizontal. Je me suis heurté à plusieurs difficultés. Le champ ainsi obtenu avec la maquette était insuffisant pour obtenir la saturation de l'échantillon dans un domaine assez grand. Puis malgré un étalonnage préalable des champs en fonction des réglages commandant leur production, il se présentait toujours une légère différence entre les valeurs obtenues dans les deux directions. Si l'hypothèse émise par M. Kornetzki d'une magnétostriction contrainte isotrope avait été vérifiée, il aurait été facile de tenir compte de cette différence. Mais l'expérience a montré que les phénomènes sont moins simples. Enfin, la plupart du temps, les mesures étaient rendues impossibles de nuit comme de jour par suite de vibrations.

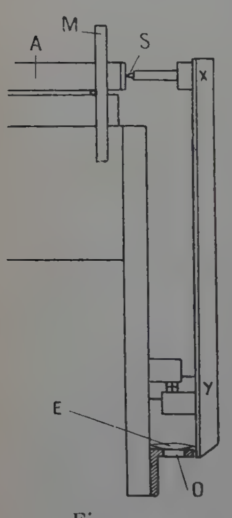


Fig. 20.

J'ai alors essayé de faire ces mesures au moyen d'un dispositif monté dans mon laboratoire et représenté schématiquement sur la figure 20. Ce dilatomètre est constitué essentiellement par un levier XY articulé en Y. L'articulation est réalisée par un dispositif à lames croisées analogue au montage déjà utilisé. L'échantillon E ayant la forme d'un ellipsoïde de révolution aplati est posé à plat sur une équerre fixe. Un orifice circulaire O dans cette équerre permet de repérer, et au besoin de corriger l'orientation du cristal. L'extrémité du levier XY appuie sur l'échantillon dont les variations de dimensions sont transmises au chariot A de la réalisation déjà décrite par une pointe de saphir S. L'échantillon est de plus maintenu en place par des guides latéraux non représentés sur la figure. La partie inférieure du dilatomètre était placée dans l'entrefer d'un petit électro-aimant d'axe horizontal. Celui-ci

pouvait tourner autour d'un axe vertical. Je mesurais ainsi la variation de longueur suivant un diamètre de l'échantillon lorsque l'électroaimant tournait d'un angle γ. Mais les mesures ainsi obtenues, quoique assez cohérentes, étaient entachées d'erreurs importantes, dues surtout à ce que le levier XY travaillait en flexion et était soumis à des forces latérales.

Je n'avais pas confiance *a priori* dans la méthode qui consiste à mesurer séparément la magnétostriction longitudinale et la magnétostriction transversale et à faire ensuite la différence. Il y a en effet beaucoup de raisons pour que l'état désaimanté ne soit pas le même lorsque la direction d'aimantation change. Toutefois je me suis demandé si les états désaimantés possibles n'étaient pas en nombre suffisamment limité pour que, chaque état initial différent fournissant une portion de la courbe représentant λ en fonction de l'orientation, il soit possible de raccorder ces différentes portions pour reconstituer la courbe entière. J'ai fait cet essai sur le nickel en utilisant les courbes $\lambda(H)$ de la figure 15. On trouve comme facteur démagnétisant de l'ellipsoïde de nickel suivant un diamètre équatorial $N = 0{,}875$. En adoptant la valeur $J_s = 490$ à 20° C, le champ démagnétisant à la saturation est $NJ_s = 430$ Oe. La correction de magnétostriction contrainte est donc immédiate. La correction de l'effet de forme est assez laborieuse puisque cet effet pour un monocristal dépend de la direction. Je ne l'ai donc pas faite avant de savoir si je pourrais obtenir des résultats utilisables. Il suffit de remarquer que l'effet de forme étant une fonction continue de la direction, pour obtenir une courbe définitive continue, il fallait d'abord que la courbe non corrigée de l'effet de forme soit elle-même continue. J'ai commencé par explorer les directions voisines de l'axe [111] qui correspond comme l'expérience le montre à un maximum de l'effet longitudinal. J'ai reporté sur la figure 21 les points obtenus à partir des courbes de la figure 15. On constate que les points correspondants aux orientations 30, 58, 71, 5, 73, 79-1, semblent bien former une courbe continue présentant un minimum sur l'axe [111]. Pour l'orientation 79, j'ai obtenu deux valeurs différentes. Il y a un décrochement que l'on peut attribuer à un état initial différent. Les points 79-11, 89 et 96 semblent bien former un arc de courbe, mais l'on voit immédiatement qu'il est impossible de raccorder cet arc avec le précédent. La possibilité d'obtenir la courbe entière de cette façon semble donc illusoire.

Je signale qu'en ce qui concerne le fer, l'application de la correction de magnétostriction contrainte conduit pour certaines directions cristallines à des valeurs très élevées de la déformation spontanée du réseau. L'échantillon de fer que j'ai étudié avait un facteur démagnétisant suivant un diamètre équatorial égal à 0,464 ; avec $J_s = 1\,700$, le champ démagnétisant à saturation est 790 Oe. L'extrapolation

jusqu'à cette valeur de la partie rectiligne des courbes $\lambda(H)$ sur la figure 17, donne pour certaines directions de très grandes valeurs de la magnétostriction spontanée longitudinale. Pour la direction 13°, j'ai pu l'évaluer à environ -90.10^{-6}. Pour cette direction, la partie rectiligne est d'ailleurs très bien déterminée par les points suivants :

$$H = 3\,910 \text{ Oe} \qquad \lambda_s = +30.10^{-6}$$
$$4\,280 \qquad +45{,}7.10^{-6}$$
$$5\,050 \qquad +73{,}5.10^{-6}$$

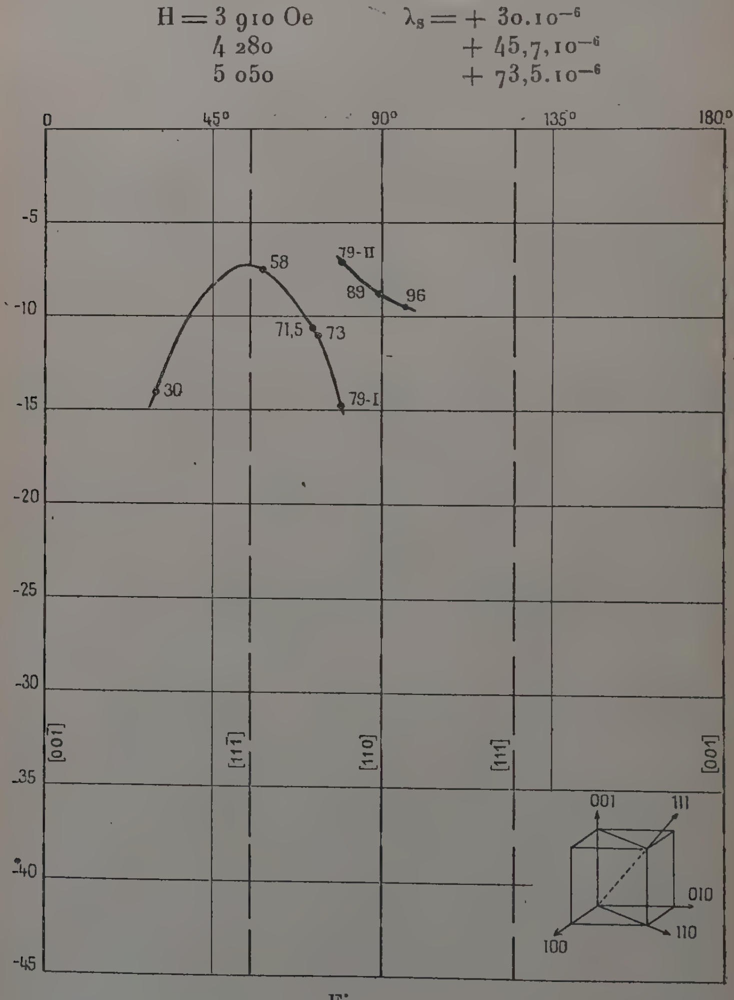


Fig. 21.

Cet exemple montre que les évaluations de la magnétostriction spontanée faites sans tenir compte de la magnétostriction contrainte peuvent être complètement erronées.

QUATRIÈME PARTIE

ÉTUDE DES FERRITES DE COBALT

L'étude générale de ces corps a été entreprise au Laboratoire du Magnétisme [11].

L'intérêt pratique des ferrites de cobalt provient de la possibilité de leur utilisation pour la fabrication d'aimants permanents. M. Guillaud est arrivé en effet à réaliser des produits pour lesquels l'énergie $(BH_c)_{max}$ atteint $1,5.10^6$ Gauss-Oe. Ces aimants sont caractérisés d'une façon générale par une valeur très élevée du champ coercitif ($H > 2\,000$ Oe) et une valeur moyenne de l'induction rémanente ($B \simeq 2\,400$ G). Or le phénomène de magnétostriction est susceptible d'apporter une certaine contribution au champ coercitif [12]. Il était donc important, du point de vue théorique, d'une part de connaître dans quelle proportion la magnétostriction peut contribuer au champ coercitif, et d'autre part de séparer cette cause des autres causes éventuelles pour en analyser le rôle.

Les ferrites sont préparés par la technique du frittage.

L'échantillon destiné aux mesures de magnétostriction est taillé par meulage en forme d'ellipsoïde de révolution de 5 mm de diamètre équatorial et de 10 mm de longueur environ Dans le cas d'un matériau orienté, deux ellipsoïdes sont extraits du même produit fini, l'un dont le grand axe est parallèle à la direction d'orientation, l'autre dont le grand axe est perpendiculaire à la direction d'orientation.

Sauf précision contraire, les résultats de mesures donnés dans cette étude concernent toujours l'effet longitudinal.

Ferrites de cobalt non orientés. — Tous les ferrites de cobalt non orientés qui ont été étudiés [22] présentent une magnétostriction négative élevée. Ce sont probablement les corps ayant la magnétostriction la plus élevée que l'on connaisse. La valeur de λ atteinte à la saturation est comprise entre -60.10^{-6} et $-110\ 10^{-6}$ pour des teneurs moléculaires en CoO comprises entre 35 et 48 o/o, le complément étant constitué par Fe_2O_3. Les courbes obtenues montrent que le champ utilisé de 12.000 Oe est suffisant en général pour obtenir la saturation de ces matériaux. La figure 22 représente les résultats de mesures faites sur des échantillons de même composition, dont le traitement ne diffère que par la pression de matriçage. Le mélange utilisé contient 56 o/o de Fe_2O_3 et 44 o/o de CoO. On constate que les courbes $\lambda(H)$ sont distinctes, mais qu'elles fournissent pratiquement

la même valeur de λ à la saturation, ce qui est en accord avec ce que l'on pouvait prévoir.

De plus ces résultats montrent par leur concordance que l'état « désaimanté » de référence est bien défini, et analogue pour tous les

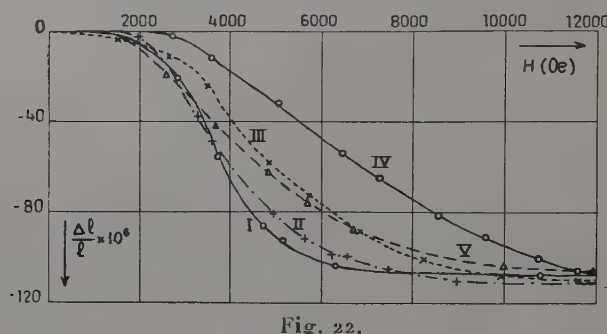


Fig. 22.

échantillons. On peut noter que dans ce cas particulier, le domaine de la saturation est marqué par un palier horizontal. Il ne semble donc pas y avoir lieu de faire une correction de magnétostriction contrainte, et il n'y a aucune ambiguïté sur la valeur à prendre pour λ. Comme l'on ne connaît pas les constantes élastiques de ces matériaux, je n'ai pas pu faire la correction de l'effet de forme. Etant donné l'ordre de grandeur particulièrement élevé de λ, cette correction est sûrement négligeable. Le tableau I donne avec la magnétostriction à saturation ainsi obtenue, la densité et le champ coercitif H_c des cinq échantillons précédents.

Tableau I

Echantillon	Densité	λ 10⁻⁶	H_c
I	3,81	— 110	1 040
II	3,64	— 110	1 260
III	3,50	— 110	1 490
IV	3,28	— 110	1 720
V	2,90	— 110	2 050

Dans l'intervalle de composition étudié et pour des traitements analogues, la magnétostriction à saturation varie régulièrement avec la composition (fig. 23). Elle est d'autant plus faible que la teneur en F_2O_3 est plus élevée, et l'on remarque que la variation de λ est relati-

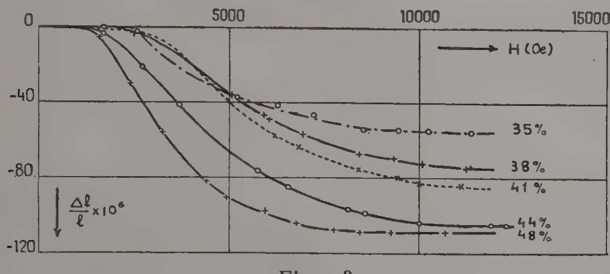


Fig. 23.

vement grande en comparaison de la variation de composition. Le pourcentage indiqué est le pourcentage moléculaire en oxyde de cobalt.

Afin de préciser la loi de variation du champ coercitif en fonction de la magnétostriction, j'ai fait une étude thermique de cette variation [23]. Les mesures ont été faites à la température ordinaire (20° C), dans la neige carbonique (— 80° C), et dans l'azote liquide (— 196° C).

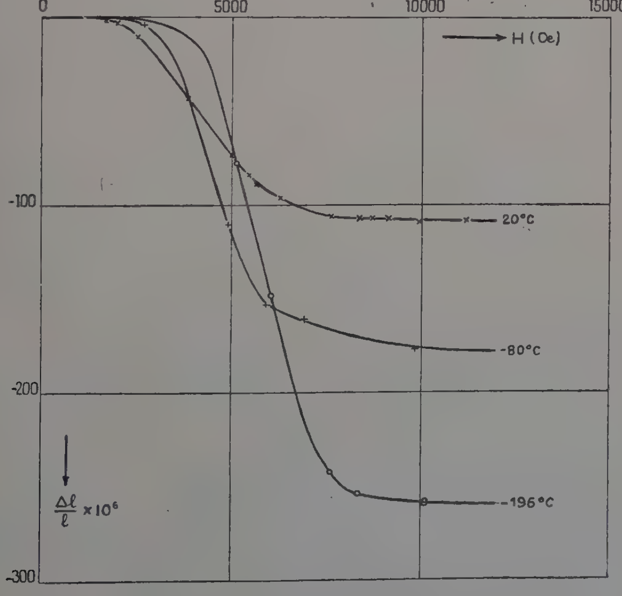


Fig. 24.

La figure 24 représente les courbes $\lambda(H)$ obtenues sur un ferrite non orienté de composition moléculaire (56 Fe_2O_3, 44 CoO) et de densité 2,90. A toutes les températures, la saturation du matériau est obtenue. On constate une évolution régulière de la courbe $\lambda(H)$ avec la température. λ reste toujours négatif et augmente en valeur absolue quand la température baisse. Le tableau II rapproche les valeurs de la magnétostriction à saturation obtenues de celles du champ coercitif aux mêmes températures.

Tableau II

Température	$\lambda\, 10^6$	H_c
20° C	— 110	2 050
— 80° C	— 180	3 100
— 196° C	— 270	6 500

Ferrites de cobalt orientés. — L'orientation de ces matériaux est obtenue par la technique habituelle, en les laissant refroidir dans un champ magnétique.

Des mesures de magnétostriction sur les ferrites de cobalt orientés ont déjà été faites par L. Weil [24], mais seulement jusqu'à 2 500 Oe. Il était donc d'un grand intérêt de poursuivre les mesures dans des champs plus élevés. L'allure des courbes obtenues est très caractéristique. On constate d'abord que les ferrites de cobalt sont susceptibles de subir une orientation très marquée. Dans la direction privilégiée, la courbe (courbes marquées ||, fig. 25) présente une allure linéaire, soit dès le début, soit seulement à partir d'un champ de 2 000 à 3 000 Oe. La partie linéaire correspond toujours à un effet positif. Elle traduit un allongement proportionnel au champ. Dans une direction perpendiculaire à la direction d'orientation, la courbe $\lambda(H)$ (courbes marquées $\perp$) traduit une contraction atteignant des valeurs comprises entre $-130 \cdot 10^{-6}$ et $-210 \cdot 10^{-6}$. Ici encore, on remarque que pour des échantillons de même composition, ayant subi des traitements différents, la magnétostriction est sensiblement la même. Toutefois, pour la direction privilégiée, les résultats montrent des variations relatives plus grandes, probablement parce que pour cette direction, la variation de longueur est beaucoup plus affectée par de légères différences d'orientation.

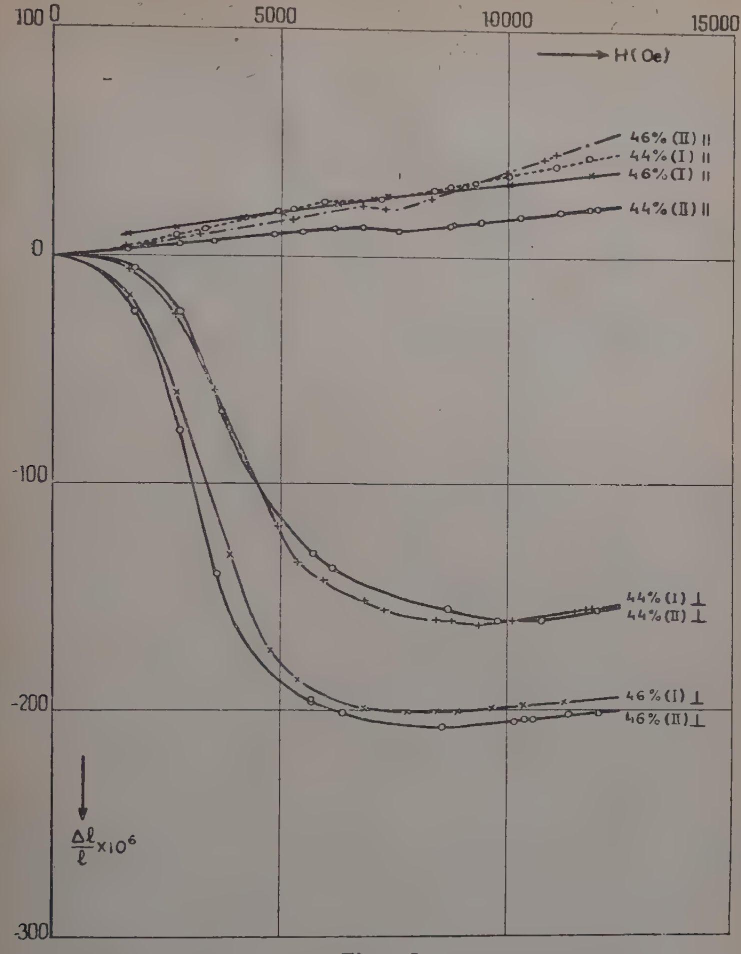
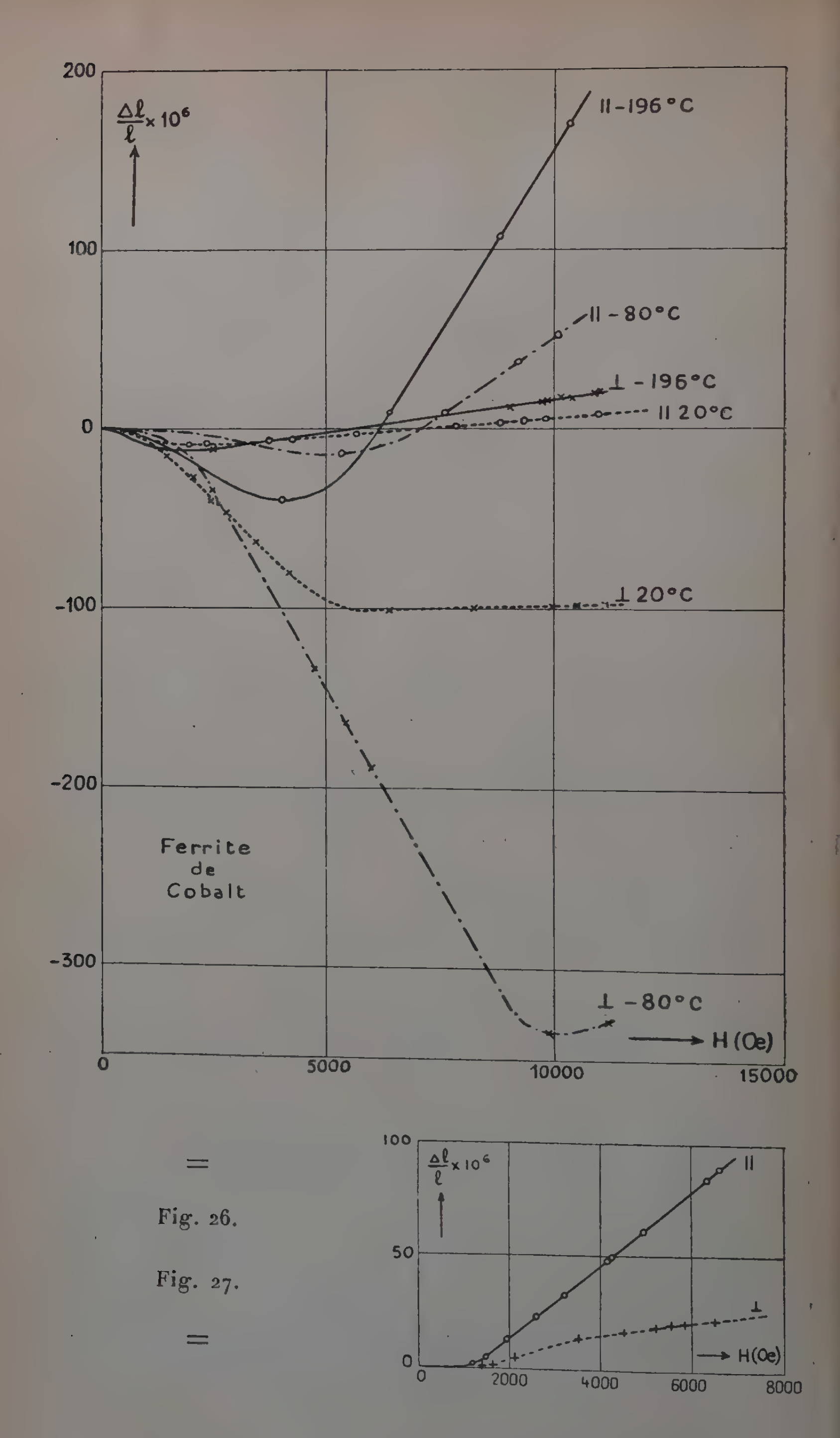


Fig. 25.

L'étude de la variation thermique de la magnétostriction a été faite également sur un ferrite orienté. La figure 26 traduit les résultats obtenus sur un produit de composition moléculaire (52 Fe_2O_3, 48 CoO). Entre 20° C et — 80° C, l'évolution des courbes dans les directions parallèle et perpendiculaire à la direction privilégiée est en accord avec ce que l'on constate sur un ferrite non orienté. Les phénomènes sont plus accentués qu'à la température ordinaire. Il faut remarquer la valeur particulièrement élevée de λ dans la direction perpendiculaire $\lambda = -335 \cdot 10^{-6}$. A — 196° C, les phénomènes se compliquent. Si l'on compare les courbes λ(H) dans la direction de l'orientation



200
100
0
-100
-200
-300
$\frac{\Delta \ell}{\ell} \times 10^6$
II -196 °C
II - 80 °C
⊥ - 196 °C
II 20 °C
⊥ 20 °C
⊥ -80 °C
Ferrite
de
Cobalt
H (Oe)
0
5000
10000
15000
100
50
0
$\frac{\Delta \ell}{\ell} \times 10^6$
II
⊥
H (Oe)
0
2000
4000
6000
8000

=

Fig. 26.

Fig. 27.

=

pour les trois températures, on constate une évolution régulière, mais en réalité, la courbe représentée pour la température de — 196° C n'est pas la seule qu'on obtienne. C'est celle que j'ai obtenue au début des mesures. Après plusieurs refroidissements à la température de — 196° et réchauffements successifs, cette courbe évolue et finit par traduire une contraction continue qui a atteint -145.10^{-6} sans être stabilisée définitivement. La forme de la courbe n'a pu être déterminée avec précision par suite de son évolution. Pour la magnétostriction dans une direction perpendiculaire à la direction d'orientation, j'ai toujours obtenu la courbe indiquée. Pour confirmer l'anisotropie de magnétostriction contrainte et évaluer son importance, j'ai effectué une mesure d'effet transversal sur un ellipsoïde orienté suivant la direction privilégiée et sur un ellipsoïde orienté suivant une direction perpendiculaire (fig. 27).

Interprétation des résultats. — Si l'on considère un champ magnétisant appliqué suivant la direction privilégiée d'un échantillon orienté, il faut rapprocher la courbe $\parallel$ de la figure 26 de la courbe $\perp$ de la figure 27. Ces deux courbes ont à peu près la même allure. La déformation de l'échantillon se présente alors comme une dilatation sensiblement isotrope. Si l'on admet que l'aimantation spontanée du matériau orienté se trouve partout dans la direction de facile aimantation la plus voisine de la direction d'orientation, les phénomènes mis en jeu le long de ces courbes sont uniquement des rotations de $\vec{J_s}$ en dehors des directions de facile aimantation. Ces phénomènes sont accompagnés d'une légère variation de volume. Si l'on se place au contraire dans le cas de l'échantillon orienté aimanté suivant une direction perpendiculaire à la direction privilégiée, les courbes correspondantes sont la courbe $\perp$ de la figure 26 et la courbe $\parallel$ de la figure 27. En tenant compte du fait que, sur la figure 27, les mesures ont été conduites jusqu'à 7 000 Oe seulement, il semble que les effets longitudinal et transversal soient du même ordre de grandeur ($\lambda = \pm 100.10^{-6}$), mais opposés. Cela est vraisemblable, car l'on doit admettre que la direction perpendiculaire à la direction d'orientation et à la deuxième direction de mesure n'est pas affectée. Ces hypothèses sont confirmées par les valeurs mesurées du rapport $\frac{J_R}{J_s}$ de l'aimantation rémanente à l'aimantation à saturation. Ces valeurs sont $\frac{J_R}{J_s} \simeq 0,5$ pour l'échantillon non orienté et $\frac{J_R}{J_s} \simeq 0,8$ pour l'échantillon orienté, en bon accord avec les valeurs théoriques,

Cette étude a également permis de montrer [11] que de tous les mécanismes élémentaires agissant sur le champ coercitif, la magnétostriction est celui dont l'action est prépondérante, et que, tout au moins au voisinage de la température ambiante, l'énergie magnétocristalline peut être négligée.

CINQUIÈME PARTIE

ÉTUDE D'UN FERRITE MIXTE DE MANGANÈSE ET DE ZINC

L'étude d'un ferrite à haute perméabilité constitue un exemple intéressant des possibilités de mesure de mon appareillage et apporte une contribution importante à la connaissance de l'influence de la magnétostriction, sur l'aimantation initiale en particulier.

La figure 28 représente la variation thermique de la magnétostriction pour un échantillon de ferrite mixte de Mn et de Zn. On constate

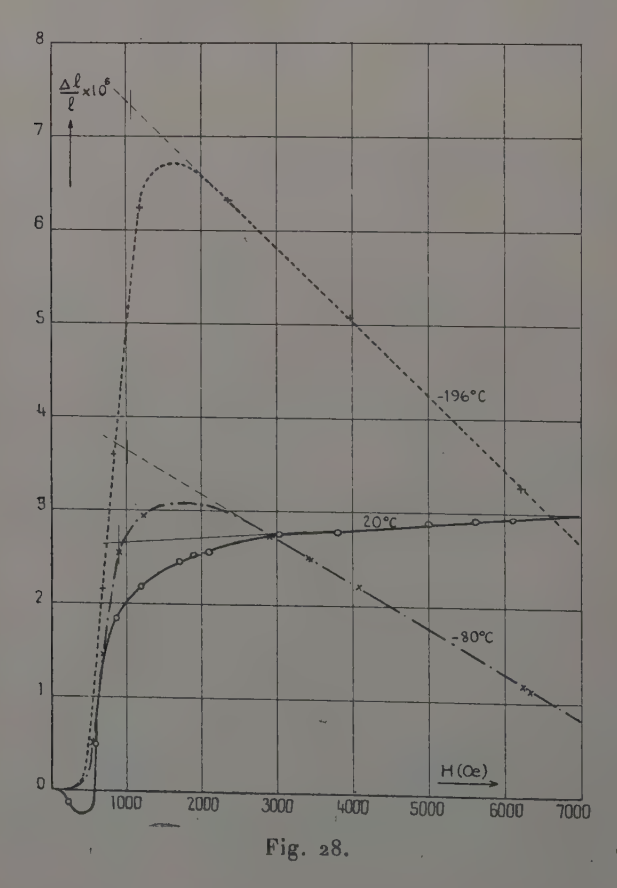


Fig. 28.

d'abord que les courbes sont très bien définies malgré la petitesse de l'effet observé. En particulier, la variation linéaire dans les champs élevés est vérifiée dans tous les cas avec une très grande précision. Ceci est un fait tout à fait général. Etant donné la faible valeur de la magnétostriction apparente, il est indispensable de tenir compte, au moins d'une façon approximative, de la magnétostriction contrainte et de l'effet de forme. Dans l'hypothèse de R. Becker, la magnétostriction contrainte était un effet isotrope. Elle ne jouait donc aucun rôle dans les phénomènes liés à l'anisotropie du matériau. On devait toujours la déduire pour calculer la valeur de λ à faire entrer dans une formule théorique. Mais j'ai montré qu'en réalité, cet effet n'est pas isotrope. Il n'est donc pas exclu qu'il puisse jouer un rôle dans les propriétés où intervient l'anisotropie. Ce qui justifie ici la correction de magnétostriction contrainte n'est pas le fait qu'il pourrait s'agir d'un effet isotrope, mais le fait que les matériaux étudiés le sont dans le domaine des champs faibles, sous forme de circuits magnétiques fermés. Le champ étant alors pratiquement nul, l'effet de magnétostriction contrainte n'existe pas. Il faut donc faire la correction correspondante par extrapolation jusqu'à un champ nul. Sur les courbes λ(H) que j'ai tracées, il suffit de prolonger la partie rectiligne jusqu'à la valeur du champ H égale au champ démagnétisant NJ_s de l'échantillon. En ce qui concerne l'effet de forme, il est évident qu'il doit être retranché des courbes expérimentales, car s'il se manifeste dans la mesure de λ pour laquelle le spécimen est un ellipsoïde, il n'existe pas lorsque le matériau constitue un circuit fermé, puisqu'il n'y a pas alors de champ démagnétisant. Pour tous les échantillons étudiés $N \simeq 2{,}20$. Les valeurs de l'aimantation à saturation à 20° C, — 80° C et — 196° C étant respectivement 410, 460 et 485 gauss les champ démagnétisants correspondants sont 900, 1 010 et 1 070 Oe. Avec la méthode de calcul posée dans la troisième partie, et en négligeant la différence entre V_0 et V, l'effet de forme se réduit à :

$$s_{zz}^{F} = \frac{J_s^2}{4G}\left(\frac{2m^2+1}{m^2-1}N_z - \frac{4\pi}{m^2-1}\right) + \frac{1}{6K}N_z J_s^{02}$$

soit avec $m = 2$:

$$s_{zz}^{F} = \frac{J_s^2}{4G}(3 \times 2{,}2 - 4{,}19) + \frac{1}{6K} \times 2{,}2 J_s^2$$

Il est donc nécessaire de connaître la valeur du module de cisaillement G, ou module de rigidité, et celle du module de compression K. Ils n'ont pu être mesurés directement. Mais il a été possible de mesurer le module d'Young sur quelques échantillons en cherchant la fréquence de résonance mécanique des oscillations radiales

d'anneaux. M. Prache a trouvé $E = 1,785 . 10^{12}$ cgs. E, G, K sont liés par les relations :

$$G = \frac{E}{2(1+\mu)} \qquad K = \frac{E}{3(1-2\mu)}$$

où μ est le coefficient de Poisson (K est l'inverse du coefficient de compressibilité $\chi = -\frac{3(1-2\mu)}{E}$). Pour avoir une estimation assez grossière, on peut généraliser aux ferrites mixtes de manganèse et de zinc les observations faites sur les solides usuels [7], et admettre $\mu \simeq 0,25$, ce qui entraîne :

$$G \simeq 0,4E \simeq 0,7 . 10^{12} \text{ cgs et } K \simeq 0,67E \simeq 1,2 . 10^{12} \text{ cgs.}$$

On obtient donc pour l'effet de forme à la température ordinaire :

$$s^F = 0,14 . 10^{-6} + 0,05 . 10^{-6} = 0,19 . 10^{-6}.$$

Les constantes élastiques aux basses températures n'étant pas connues, j'ai adopté la valeur $0,2 . 10^{-6}$ pour l'effet de forme à toutes les températures. J'ai porté dans le tableau VI la valeur λ_1 obtenue après correction de magnétostriction contrainte, et la valeur λ_2 qui tient compte aussi de l'effet de forme. J'ai ajouté la valeur de perméabilité initiale μ.

TABLEAU VI

Température	J_s	NJ_s	$\lambda_1 . 10^6$	$\lambda_2 . 10^6$	μ
20° C	410	900	$+ 2,6_8$	$+ 2,4_5$	1 800
— 80° C	460	1 010	$+ 3,6_4$	$+ 3,4_4$	1 010
— 196° C	485	1 070	$+ 7,3_2$	$+ 7,1_2$	820

Sur la figure 29, j'ai représenté la variation thermique de λ entre 20° C et 29° C pour deux autres échantillons de ferrite mixte de manganèse et de zinc. Le tableau VII contient les valeurs numériques correspondantes. J'ai choisi ces trois échantillons car leur comportement vis à-vis de la magnétostriction est caractéristique. Pour le premier échantillon, la magnétostriction augmente quand la température diminue, pour l'échantillon II, λ garde pratiquement une valeur constante, tandis que pour l'échantillon III, la magnétostriction est plus faible à basse température qu'à la température ordinaire.

Les valeurs de J_s sont assez peu différentes pour ces trois échantillons. Comme ils ont été préparés de la même manière, il est permis

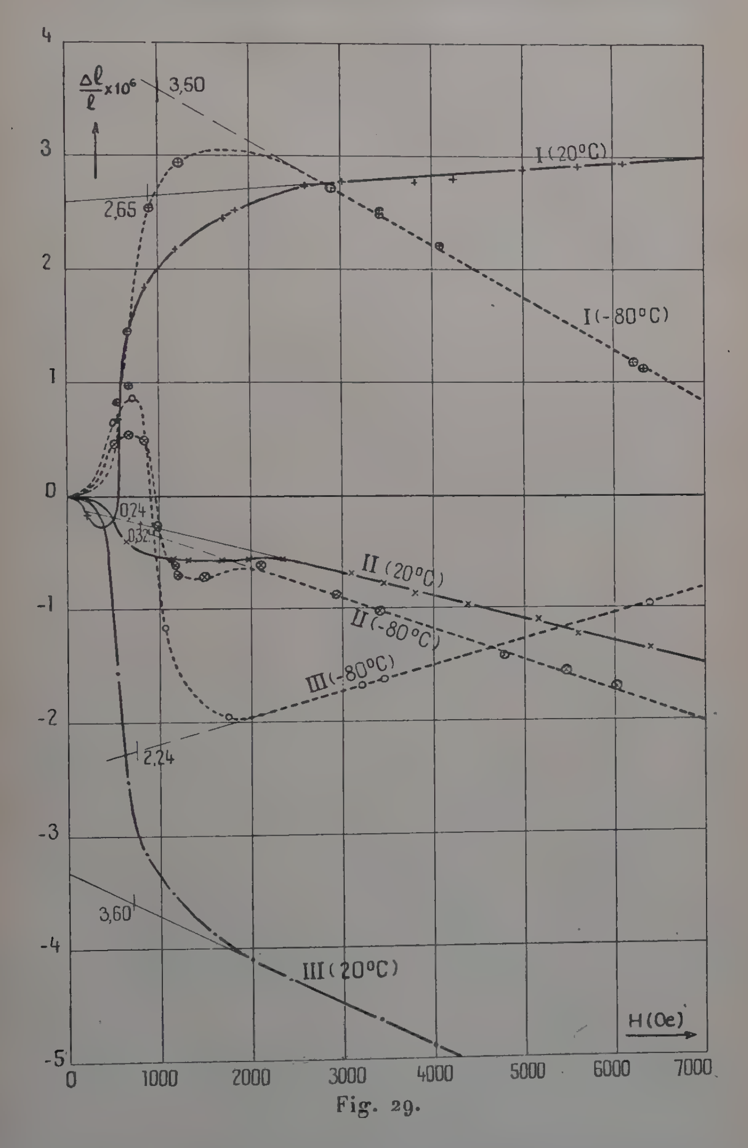


Fig. 29.

de supposer que les tensions internes qui ne dépendent pas de λ ne sont pas très différentes, celles qui sont dues à la magnétostriction

variant dans le même sens que λ. Les résultats expérimentaux montrent donc que la perméabilité initiale ne peut être représentée par une relation de la forme $\frac{J_s^2}{\lambda\sigma}$. Une conclusion s'impose. Il n'est pas possible d'expliquer les valeurs trouvées de la perméabilité par la seule influence de l'énergie magnétoélastique.

TABLEAU VII

Echantillon	Température	J_s	NJ_s	$\lambda.10^6$	μ
II	20° C	360	790	— 0,24	3 650
II	— 80° C	400	880	— 0,32	2 200
III	20° C	317	700	— 3,60	3 050
III	— 80° C	360	790	— 2,24	2 020

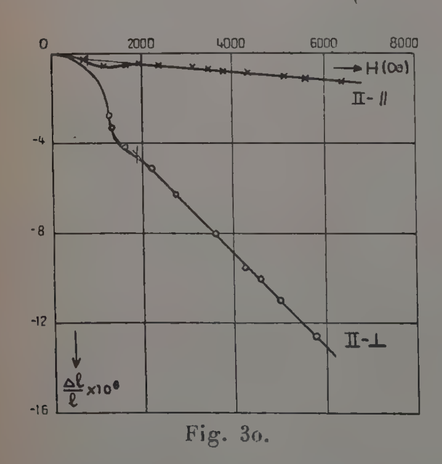


Fig. 30.

Il est aussi instructif pour comprendre les phénomènes observés de tenir compte de la figure 30 qui concerne l'échantillon II déjà considéré. J'ai reporté sur le même graphique l'effet longitudinal (marqué ||) et l'effet transversal (marqué ⊥). Dans le cas de l'aimantation transversale, le facteur démagnétisant dans la direction de l'aimantation est égal à 5,2, ce qui correspond à un champ démagnétisant de 1872 Oe, d'où $\lambda_{1\perp} = -4{,}3.10^{-6}$. L'aimantation étant dirigée suivant l'axe équatorial, l'énergie de champ démagnétisant ramenée à l'unité de volume est $A^F = \frac{1}{2}\frac{V}{V_0}N_x J_s^2$, et l'effet de forme observé suivant l'axe de révolution Oz est :

$$s_{zz}^F = -\frac{1}{2G}\frac{1}{2V_0}\frac{\partial(VN_xJ_s^2)}{\partial s_{zz}} - \frac{3K-2G}{18KG}\frac{1}{2V_0}N_x\left[\frac{\partial(VJ_s^2)}{\partial s_{xx}} - \frac{\partial(VJ_s^2)}{\partial s_{yy}} - \frac{\partial(VJ_s^2)}{\partial s_{zz}}\right].$$

La déformation s_{zz} conservant la symétrie de révolution de l'ellipsoïde, on a toujours :

$$N_x = \frac{1}{2}[4\pi - N_z]$$

d'où :

$$\frac{\partial N_x}{\partial s_{zz}} = -\frac{1}{2}\frac{\partial N_z}{\partial s_{zz}}.$$

Finalement :

$$s_{zz}^F = -\frac{J_S^2}{8G}\left(\frac{2m^2+1}{m^2-1}N_z - \frac{4\pi}{m^2-1}\right) + \frac{1}{6K}N_x J_S^2$$

$$= -0{,}054 \cdot 10^{-6} + 0{,}09 \cdot 10^{-6} \simeq +0{,}04 \cdot 10^{-6}.$$

L'effet de forme transversal est donc négligeable. On a finalement :

$$\lambda_{sl} = -0{,}24 \cdot 10^{-6}$$
$$\lambda_{st} = -4{,}3 \cdot 10^{-6}.$$

Il semble donc qu'il serait illusoire de vouloir expliquer les propriétés magnétiques en se basant uniquement sur la valeur de l'effet longitudinal de la magnétostriction, alors que l'effet transversal peut être beaucoup plus élevé. Pour construire une théorie plus valable, il faudrait tenir compte, dans l'expression de l'énergie magnétoélastique, du phénomène de magnétostriction sous une forme plus complète.

CONCLUSIONS

L'étude faite sur les monocristaux de fer et de nickel a d'abord confirmé l'existence dans les champs élevés d'une variation des dimensions proportionnelle à la variation du champ magnétique. Elle a en outre montré de façon indiscutable que pour une direction du champ donnée, ce phénomène dépend de la direction de mesure. Ainsi il n'est pas le même pour l'effet longitudinal et pour l'effet transversal. De plus, l'effet longitudinal par exemple, dépend de la direction du champ. Enfin, ce phénomène appelé effet de magnétostriction contrainte est très souvent de sens opposé à celui de la magnétostriction spontanée pour les mêmes directions du champ et de la mesure. Il n'est donc pas possible de l'expliquer par une relation simple entre l'intensité de l'aimantation spontanée et la variation de volume.

Les mesures faites sur le fer montrent que dans certaines directions cristallographiques, l'effet dans les champs élevés se traduit par une droite de très grande pente. En appliquant la correction de magnétostriction contrainte, j'ai ainsi obtenu pour la magnétostriction spontanée une valeur de l'ordre de $-90 \cdot 10^{-6}$. La différence entre cette valeur et les valeurs généralement admises montre la nécessité de poursuivre les mesures de magnétostriction dans des champs magnétiques élevés.

Les ferrites de cobalt constituent un exemple intéressant d'un domaine d'étude où l'union de la théorie et de la technique aide aux progrès de l'une et de l'autre. En particulier, les données expérimentales sur la magnétostriction et plus précisément l'étude de sa variation thermique, qui a été réalisée pour la première fois, ont permis de formuler et de vérifier une hypothèse sur le mécanisme de l'aimantation et du champ coercitif des ferrites de cobalt.

Enfin, l'étude de la magnétostriction de ferrites à haute perméabilité a montré que l'on ne pouvait établir une relation simple entre λ et μ.

Travail effectué au Laboratoire du Magnétisme de Bellevue

BIBLIOGRAPHIE

[1] R. Becker et W. Doring. — *Ferromagnetismus,* 1939, Springer, Berlin.
[2] R. Becker. — *Z. Phys.,* 1934, **87**, 560-579.
[3] R. M. Bozorth. — *Ferromagnetism,* 1951, Van Nostrand Company Inc. New-York.
[4] R. M. Bozorth et J. G. Walker. — *Phys. Rev.,* 1953, **89**, n° 3, 624-629.
[5] R. M. Bozorth et R. W. Hamming. — *Phys. Rev.,* 1953, **89**, n° 4, 865-869.
[6] G. Bruhat. — *Optique,* Masson, 2e éd., 242.
[7] G. Bruhat. — *Mécanique,* Masson, 2e éd., 642.
[8] W. J. Carr et R. Smoluchovski. — *Phys. Rev.,* 1951, **83**, n° 6, 1236-1243.
[9] Pour l'exposé des travaux de Chévenard sur cette question, consulter le rapport de Weiss au Conseil Solvay de 1930. *L'anomalie de volume des ferromagnétiques,* Paris, Gauthier-Villars, 1932.
[10] F. Gaume. — *Journal des Recherches du C. N. R. S.,* n° 3, 137-144 et n° 7, 178-196.
[11] Ch. Guillaud. — Communication au Colloque International de Maryland (U. S. A., 1952). *Rev. Modern Physics,* **25**, n° 1, 64-74.
[12] Ch. Guillaud. — Séance du 31 mai 1947 de la Société Française de Physique, Groupe de Strasbourg. *J. Phys. Rad.,* 1947 [34], **8**, n° 10.
[13] Ch. Guillaud. — Communication au Colloque International de Grenoble (1950). *J. Phys. Rad.,* 1951, **12**, n° 3, 492-497.
[14] Ch. Guillaud, R. Vautier, S. Medvedieff. — *C. R. Ac. Sc.,* 2 janv. 1950, **230**, 60-62.
[15] M. Kornetzki. — *Z. Phys* , 1934, **87**, 560-579.
[16] Y. Masiyama. — *Sci. Tôhoku Univ.,* 1928, **17**, 945-961.
[17] W. P. Mason. — *Phys. Rev.,* 1951, **82**, n° 5, 715-723.
[18] L. Néel. — *Ann. Physique,* 8 oct. 1937 [2], 237-308.
[19] J. A. Osborn. — *Phys. Rev* , 1945, **67**, nos 11-12, 351-357.
[20] F. C. Powell. — *Proc. Cambridge Phil. Soc.,* 1931, **27**, 561-569.
[21] E. C. Stoner. — *Philosophical Magazine,* 1945 [7], **36**, 803-821.
[22] R. Vautier. — *C. R. Ac. Sc.,* 4 août 1952, **235**, 356-358.
[23] R. Vautier. — *C. R. Ac. Sc.,* 11 août 1952, **235**, 417-419.
[24] L. Weil. — *C. R. Ac. Sc.,* 24 mars 1952, **234**, 1351-1352.
[25] P. Weiss et R. Forrer. — *Ann. Phys.,* 1926 [10], **5**, 153-213.

Le Gérant : G. Masson.

DÉPÔT LÉGAL : 1954, 2e TRIMESTRE, N° D'ORDRE 1907, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
BARNÉOUD FRÈRES ET Cie, IMPRIMEURS (31.0566), LAVAL, N° 2932. — 6-1954.

REMARQUES SUR LE CALCUL DES POLARISABILITÉS DES ORBITALES ATOMIQUES DU TYPE 2s

Par M. JEAN GUY, Mlle MONIQUE HARRAND et M. JACQUES TILLIEU

Bien que l'orbitale 2s de l'atome d'hydrogène représente un état excité instable et soit de plus dégénérée (les orbitales 2p de même énergie interviennent dans la fonction d'ondes permettant le calcul de la polarisabilité réelle de l'état de nombre quantique principal égal à 2), la résolution complète des équations (3) conduisant à la polarisabilité de cette orbitale présente un intérêt théorique. Par suite de la parenté analytique existant entre la fonction propre de H [1] :

$$\psi_{2s} = \frac{1}{2\sqrt{\pi}} R_{20}(\rho) = \frac{1}{4\sqrt{2\pi}} (\rho - 2)e^{-\rho/2} \qquad [1]$$

et les fonctions représentatives usuelles des orbitales 2s des atomes ayant à l'état fondamental des électrons sur la couche L ($Z \geqslant 3$) (2), le calcul d'une polarisabilité fictive pour H(2s) fournit un certain nombre de renseignements utiles pour la détermination des polarisabilités des orbitales 2s des autres atomes, celles-ci n'étant plus dégénérées.

RECHERCHE DE LA FONCTION PROPRE

Le champ électrique uniforme $\vec{F}$ étant appliqué suivant la direction Oz, il convient de trouver une fonction propre de la forme :

$$\psi = \psi_{2s}[1 + Ff(x, y, z)] \qquad [2]$$

(1) R_{20} représente la fonction radiale normalisée de l'état 2s. Tous les calculs sont effectués en unités atomiques (a_0 pour les distances e^2/a_0 pour l'énergie, a_0^3 pour les polarisabilités).

[Publi]cation périodique bimestrielle.

satisfaisant aux conditions générales imposées aux fonctions propres. Cette fonction unique est solution de l'équation aux dérivées partielles :

$$2z\psi_{2s} + \psi_{2s}\Delta f + 2\ \overrightarrow{\mathrm{grad}}\, f.\overrightarrow{\mathrm{grad}}\, \psi_{2s} = 0. \qquad [3]$$

En coordonnées polaires ($x = \rho \sin\theta \cos\varphi$, $y = \rho \sin\theta \sin\varphi$, $z = \rho \cos\theta$), comme f ne dépend pas de φ (symétrie de révolution autour de la direction du champ appliqué) et est de plus antisymétrique par rapport au plan xOy, il est indiqué de chercher une solution du type :

$$f(\rho, \theta) = g(\rho) \cos\theta. \qquad [4]$$

Cette forme de f permettant la séparation des variables, l'équation aux dérivées partielles [3] se réduit à l'équation différentielle :

$$\rho^2(\rho - 2)\frac{d^2g}{d\rho^2} - \rho(\rho^2 - 6\rho + 4)\frac{dg}{d\rho} - 2(\rho - 2)g = -2\rho^3(\rho - 2) \qquad [5]$$

admettant la solution générale :

$$\left.\begin{aligned} g(\rho) = \frac{1}{\rho - 2}\Big\{ & \rho^3 + 6\rho^2 + C_1\rho - 72 - \frac{72}{\rho} - \frac{48}{\rho^2} + 24\rho \operatorname{Log}\rho \\ & + C_2\Big[e^{\rho}\Big(\frac{1}{\rho^2} + \frac{1}{2\rho} + \frac{1}{2}\Big) - \frac{\rho}{2}\overline{Ei}(\rho)\Big]\Big\} \end{aligned}\right\} \qquad [6]$$

où $\overline{Ei}(\rho)$ est l'exponentielle intégrale $\int_{-\infty}^{\rho} \frac{e^{\rho}}{\rho}\, d\rho$.

Etant donnée la forme analytique de [6], la sommabilité de $\psi_{2s}^2[1 + Ff]^2$ n'est assurée pour ρ tendant vers $+\infty$ que par $C_2 = 0$, tandis qu'au voisinage de $\rho = 0$, on doit avoir $C_2 = 48$. Cette nécessité de choisir deux valeurs différentes pour C_2 suivant le domaine de variation de ρ ne rend toutefois pas impossible la solution du type [4]. D'après l'équation [5], il y a permutation possible autour du point $\rho = 2$ (sphère nodale de l'état $2s$ de H) de toutes les solutions telles que :

$$\left(\frac{dg}{d\rho}\right)_{\rho=2} = 0. \qquad [7]$$

Or la condition [7] assure précisément la continuité, au voisinage de $\rho = 2$, de la première dérivée de $\psi^2 = [\psi_{2s}(1 + Ff)]^2$, tandis que ψ^2 est nulle en ce point. On obtient donc une solution du problème en choisissant dans les intervalles $(0, 2)$ et $(2, +\infty)$ deux fonctions $g(\rho)$ différentes satisfaisant toutes deux à la condition [7] à la limite commune des deux domaines, c'est-à-dire sur la sphère nodale. On obtient pour $0 < \rho < 2$:

$$g_1(\rho) = \frac{1}{\rho - 2}\Big\{\rho^3 + 6\rho^2 + [44 + 24\overline{\mathrm{E}i}(2) - 24e^2]\rho - 72 - \frac{72}{\rho} - \frac{48}{\rho^2} + 24\rho \operatorname{Log}\frac{\rho}{2} + 48\Big[e^\rho\Big(\frac{1}{\rho^2} + \frac{1}{2\rho} + \frac{1}{2}\Big) - \frac{\rho}{2}\overline{\mathrm{E}i}(\rho)\Big]\Big\}$$

et pour $2 < \rho$:

$$g_2(\rho) = \frac{1}{\rho - 2}\Big\{\rho^3 + 6\rho^2 + 44\rho - 72 - \frac{72}{\rho} - \frac{48}{\rho^2} + 24\rho \operatorname{Log}\frac{\rho}{2}\Big\}. \quad [8]$$

Comme la discontinuité présentée par la fonction g pour $\rho = 2$ peut sembler en contradiction avec la notion de continuité des fonctions d'ondes, il convient de faire à ce sujet les remarques suivantes :

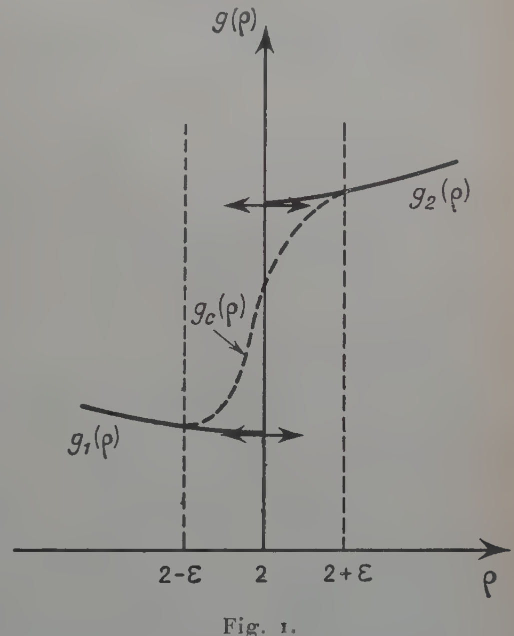


Fig. 1.

1) Cette discontinuité de $g(\rho)$ n'entraîne pas de propriétés analogues pour une grandeur physique liée et mesurable comme la densité électronique. Celle-ci, se déduisant directement de ψ^2 demeure continue ainsi que sa dérivée première par rapport à ρ.

2) L'équation d'Euler [5] détermine les extrémales de :

$$\mathrm{E} = \frac{\int \psi^* \mathrm{H} \psi d\tau}{\int \psi^* \psi d\tau} \simeq \mathrm{E}_0 - \frac{1}{2}\mathrm{F}^2 \int [4zf - |\,\overrightarrow{\mathrm{grad}}\, f\,|^2]\psi_{2s}^2 d\tau.$$

Dans le problème actuel, par suite de [4], on trouve en intégrant par rapport aux variables φ et θ que [5] est équivalent à :

$$\delta \mathrm{I} = \delta \int \Big[4\rho^3 g - \rho^2\Big(\frac{dg}{d\rho}\Big)^2 - 2g^2\Big]\psi_{2s}^2 d\rho = 0.$$

En remplaçant dans cette dernière intégrale I la fonction-solution discontinue $g(\rho)$ par une fonction continue aussi simple que possible

$g_c(\rho)$, coïncidant avec $g_1(\rho)$ dans l'intervalle $(0, 2-\varepsilon)$ et avec $g_2(\rho)$ pour $2+\varepsilon < \rho$ (fig. 1 ; $\varepsilon > 0$), on trouve, pour ε assez petit, une diminution de I du premier ordre en ε. Il existe donc une infinité de fonctions continues donnant à I une valeur aussi proche qu'on le désire de son extremum ; par suite, la fonction $g(\rho)$ discontinue peut être considérée comme la limite de cette suite de fonctions continues.

CALCUL DE LA POLARISABILITÉ FICTIVE DE H(2s)

La connaissance de $g(\rho)$ permet le calcul de la polarisabilité de l'état 2s (3) :

$$\left.\begin{aligned}\alpha_{2s} &= \int 2zf\psi_{2s}^2 d\tau = 2/3 \left\{ \int_0^{+2} \rho^3 g_1(\rho) R_{20}^2(\rho) d\rho + \int_{+2}^{+\infty} \rho^3 g_2(\rho) R_{20}^2(\rho) d\rho \right\} \\ &= [0{,}019 + 882{,}89] a_0^3 = 882{,}91 a_0^3\end{aligned}\right\} \quad [9]$$

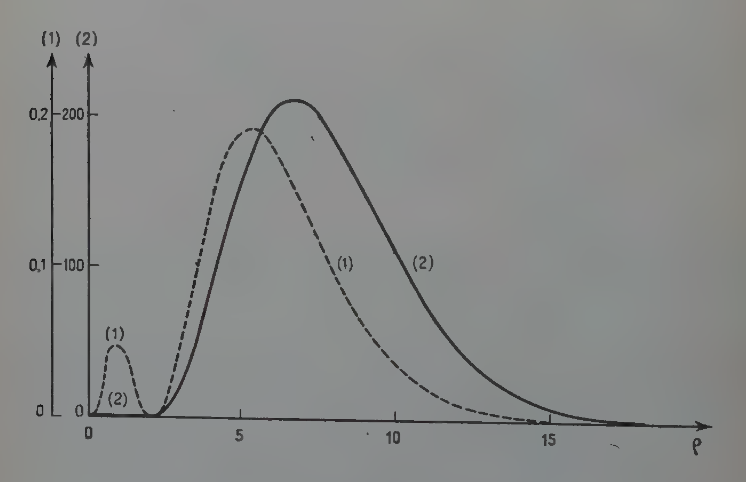


Fig. 2. — Etat 2s de l'atome d'hydrogène
$(1) \rho^2 R_{20}^2(\rho)$ $(2) \rho^3 R_{20}^2(\rho) g(\rho)$.

Cette polarisabilité n'a pas de signification pour l'atome d'hydrogène lui-même par suite de l'effet Stark du premier ordre dû à la dégénérescence 2s-2p. Cette valeur fictive a cependant l'intérêt de montrer la très faible contribution de l'intervalle (0,2) à la polarisabilité totale (Voir les courbes de la figure 2 représentant la densité élec-

tronique $\rho^2 R_{20}^2(\rho)$ et la fonction $\rho^3 R_{20}^2(\rho) g(\rho)$ dont la quadrature donne la polarisabilité, et à titre de comparaison les courbes analogues de la figure 3 correspondant à l'état 1*s*).

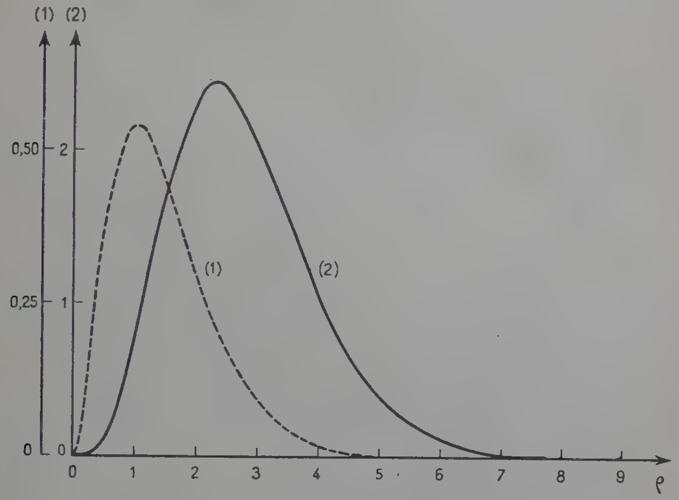


Fig. 3. — Etat 1*s* de l'atome d'hydrogène
(1) $\rho^2 R_{10}^2(\rho)$ (2) $\rho^3 R_{10}^2(\rho) g(\rho)$.

APPLICATION AUX AUTRES ATOMES

Pour les atomes autres que l'hydrogène, l'équation [3] devient pratiquement impossible à résoudre et le calcul de la polarisabilité partielle de l'orbitale 2*s* de ces atomes s'effectue de manière empirique en utilisant la méthode de variation.

L'étude précédente suggère de négliger la faible contribution à la polarisabilité de l'intervalle $(0, \rho_n)$, c'est-à-dire de l'espace intérieur à la sphère nodale et de choisir pour $g_2(\rho)$ $(\rho_n < \rho)$ des fonctions d'essai à nombre de termes limité, du type :

$$g_2(\rho) = a_0 + a_2(\rho - \rho_n)^2 + a_3(\rho - \rho_n)^3 + \dots \qquad [10]$$

où a_0, a_2, a_3, ... sont des paramètres à déterminer par la condition de minimum de l'énergie ($a_1 = 0$ puisque $dg_2/d\rho = 0$ pour $\rho = \rho_n$).

Le calcul a été effectué pour H, Li et Be, en utilisant pour ces deux derniers atomes les fonctions ψ_{2s} de Duncanson et Coulson (2) :

$$\psi_{2s} = \sqrt{(\mu^5/3\pi N)}\left[\rho e^{-\mu\rho} - (3A/\mu) e^{-\mu b \rho}\right]$$

(Ces fonctions dérivent de la fonction hydrogénoïde par introduction des trois paramètres A, b, μ destinés à leur donner une souplesse suffisante pour appliquer la méthode de variation).

TABLEAU I

	μ	N	A	b	$b\mu$
Li	0,658	0,951	0,633552	3,43	2,26
Be	0,979	0,945	0,697215	3,35	3,28

Les résultats obtenus par notre méthode à partir de [10] et, à titre de comparaison par la méthode de Hassé (4), c'est-à-dire en prenant une fonction $g(\rho)$ unique, valable pour tout l'espace et du type :

$$g(\rho) = b_1\rho + b_2\rho^2 + b_3\rho^3 + \dots \qquad [11]$$

sont réunis dans le tableau II et sur les graphiques IV, V et VI.

TABLEAU II

	Nouvelle méthode				Méthode de Hassé			
	a_0	a_2	a_3	α_{2s}	b_1	b_2	b_3	α_{2s}
H	176			698,7	28			784
	149,14	2,238		869,98	29,6	— 0,2		784,8
	142,79	3,360	— 0,1186	877,04	32,17	— 0,911	0,044	785,88
Li	35,883			93,28	12,027			144,65
	27,247	1,618		146,46	11,008	0,196		144,99
	27,587	1,468	0,025	146,72	13,501	— 0,793	0,088	145,31
Be	11,224			19,635	5,453			29,74
	8,612	1,092		30,305	5,001	0,129		29,808
	8,714	0,991	0,025	30,356	6,077	— 0,507	0,0846	29,988

DISCUSSION DES RÉSULTATS OBTENUS

Pour H(2s), l'étude de la figure 4 a montré que la fonction approchée du type [10] conduit, à partir de deux paramètres, à une polari-

sabilité très voisine de celle obtenue par la résolution rigoureuse de [3] ; par contre, la méthode de Hassé (courbe 4*b*) aboutit à des résultats nettement plus faibles et de croissance très lente en fonction du nombre de paramètres. Avec la nouvelle méthode, il semble donc

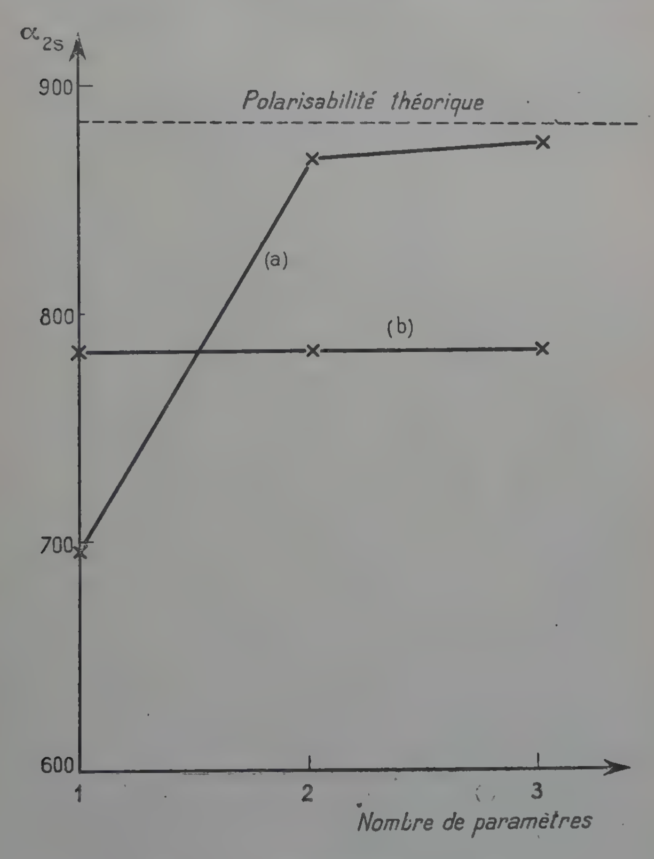


Fig. 4. — Polarisabilité de H (2*s*).

possible de se limiter, pour les calculs numériques, à l'emploi de deux ou trois paramètres, tout en conservant une bonne approximation.

L'allure des figures 5 pour Li (orbitale 2*s*) et 6 pour Be (orbitale 2*s*) est très comparable à celle du graphique 4. Ceci confirme

les conclusions précédentes : la polarisabilité obtenue à l'aide de [10] avec deux et trois paramètres doit être très proche de la polarisabilité théorique qui correspondrait à la solution exacte de [3]. Dans les deux cas, la méthode de Hassé conduit à des résultats légèrement

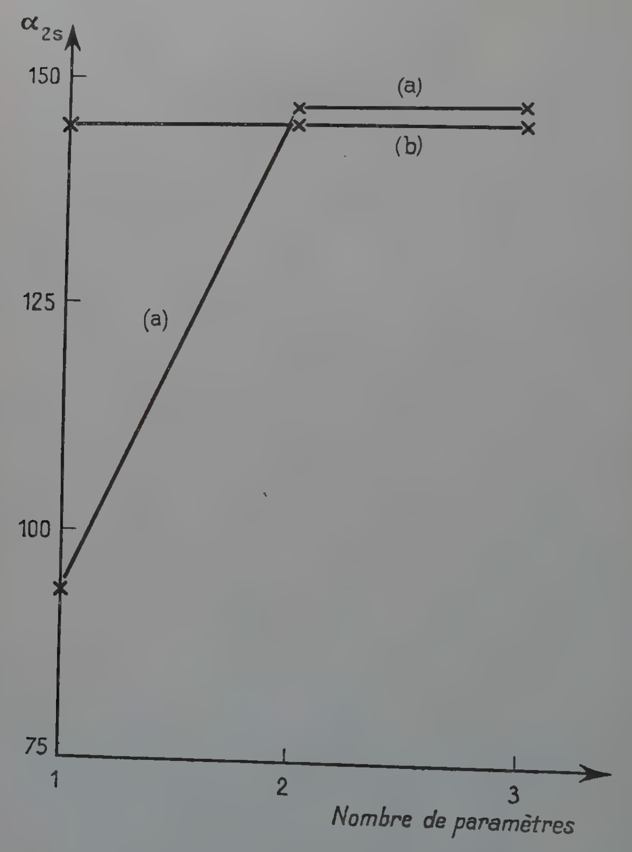


Fig. 5. — Polarisabilité de Li (2s).

inférieurs à ceux obtenus en utilisant [10] avec deux ou trois paramètres.

En conclusion, notre étude justifie :

1) l'omission simplificatrice de l'espace intérieur à la surface nodale ; il est d'ailleurs bien connu que la polarisabilité électrique et

la susceptibilité magnétique dépendent surtout des portions externes des orbitales (1).

2) l'emploi de fonctions d'essai de la forme [10], en se limitant à deux ou trois paramètres.

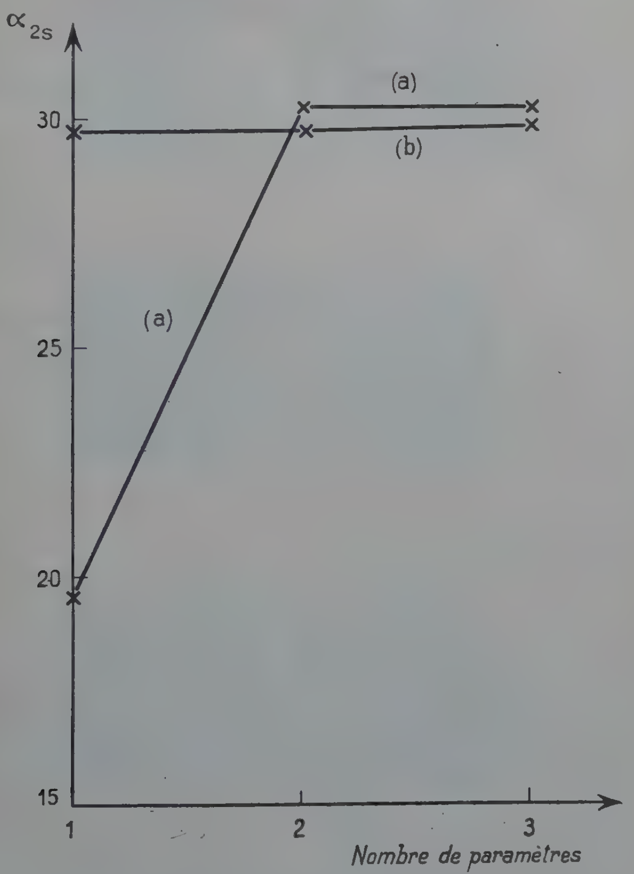


Fig. 6. — Polarisabilité de Be (2*s*).

BIBLIOGRAPHIE

(1) J. A. Abbott et H. C. Bolton. — *Proc. Roy. Soc.* (A), 1953, **216**, 477.
(2) W. E. Duncanson et C. A. Coulson. — *Proc. Roy. Soc. Edinburgh* (A), 1944, **62**, 37.
(3) J. Guy et M. Harrand (Mlle). — *C. R.*, 1952, **234**, 616 et 716.
(4) H. R. Hassé. — *Proc. Camb. philos. Soc.*, 1930, **26**, 542 et 1931, **27**, 71.

DIFFRACTION DE LA LUMIÈRE PAR DEUX FAISCEAUX D'ULTRASONS

Intensité des raies de combinaison

Par S. PARTHASARATHY et HARKRISHAN SINGH

On sait que le spectre de diffraction dû à un cristal excité simultanément à deux fréquences ultrasonores différentes est équivalent au spectre de diffraction produit par deux cristaux de quartz excités aux deux fréquences superposées l'une à l'autre. Le spectre consiste en raies principales correspondant aux deux fréquences excitatrices, et en un certain nombre de raies secondaires dues aux fréquences de combinaison.

La position des diverses raies d'un spectre de diffraction ainsi obtenu est donnée par la relation (1) (2) :

$$\sin\theta = \pm\gamma \cdot \frac{\lambda}{\lambda_1^*} \pm S\frac{\lambda}{\lambda_2^*}$$

où λ_1^* et λ_2^* sont les longueurs d'onde des deux ondes ultrasonores, λ la longueur d'onde de la lumière, θ l'angle de diffraction, γ et S des nombres entiers.

D'après la théorie élémentaire de Raman-Nath, il semblerait que les bandes latérales situées autour des raies du premier ordre de la

---

Fig. 1. — I*a*. Haute fréquence (h) = 15.865
Basse fréquence (l) = 6.716
I*b*. Haute fréquence (h) = 15.868
Basse fréquence (l) = 6.133

Fig. 2. — II*a*. Haute fréquence (h) = 13.024
Basse fréquence (l) = 5,552
II*c*. Haute fréquence (h) = 13.017
Basse fréquence (l) = 3.801

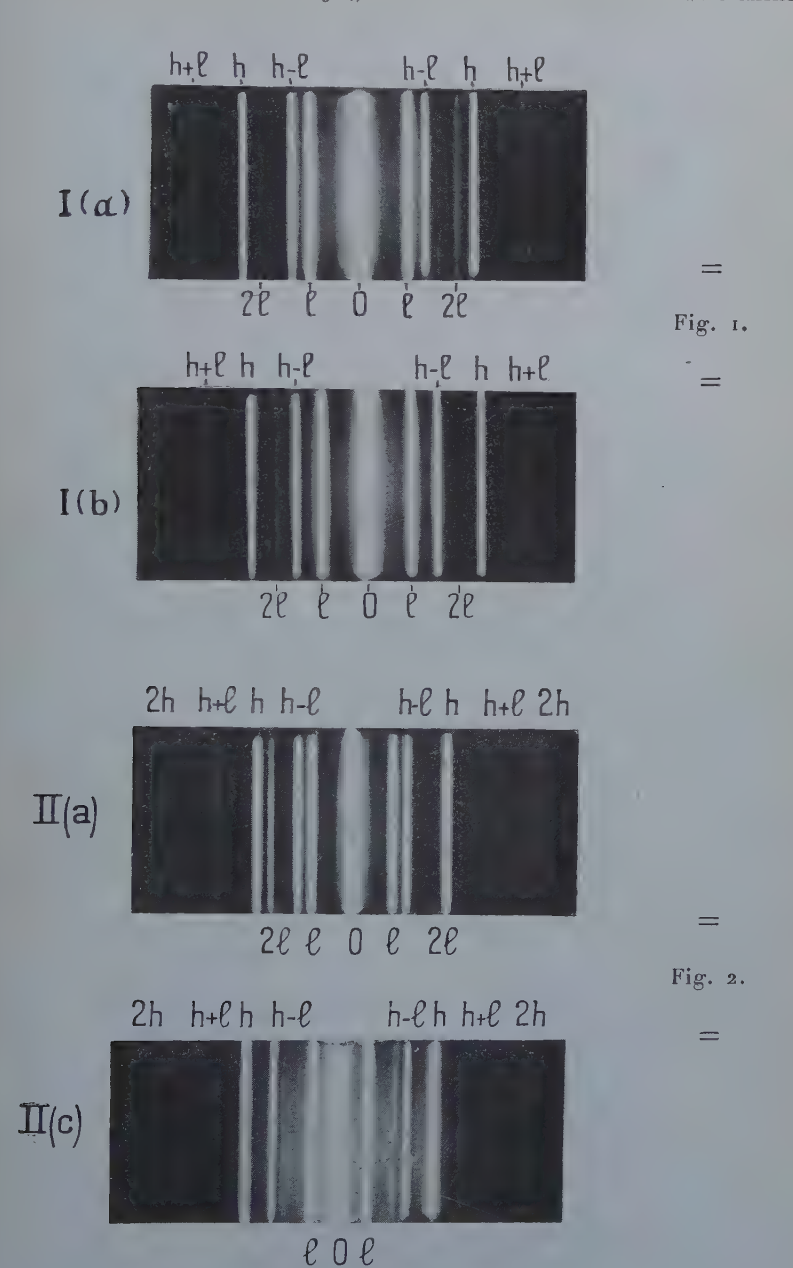

h+ℓ h h-ℓ h-ℓ h h+ℓ
I(a)
2ℓ ℓ 0 ℓ 2ℓ
h+ℓ h h-ℓ h-ℓ h h+ℓ
I(b)
2ℓ ℓ 0 ℓ 2ℓ
2h h+ℓ h h-ℓ h-ℓ h h+ℓ 2h
II(a)
2ℓ ℓ 0 ℓ 2ℓ
2h h+ℓ h h-ℓ h-ℓ h h+ℓ 2h
II(c)
ℓ 0 ℓ

Fig. 1.

Fig. 2.

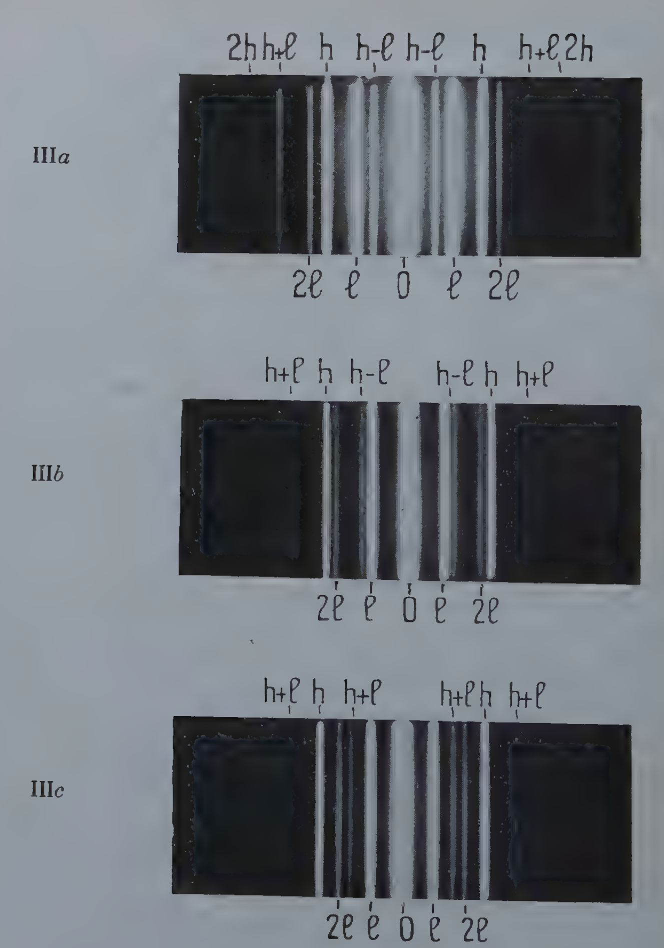


Fig. 3.

IIIa. Haute fréquence (h) = 10.099
Basse fréquence (l) = 6.133

IIIb. Haute fréquence (h) = 10.012
Basse fréquence (l) = 4.393

IIIc. Haute fréquence (h) = 10.013
Basse fréquence (l) = 3.819

haute fréquence soumettant le quartz à deux oscillations simultanées, dussent être de même intensité. Bergmann (3) a obtenu des spectres de diffraction en excitant le cristal à deux fréquences simultanément, mais n'a rien signalé sur les intensités des bandes latérales.

Cependant, au cours de nos expériences sur la dispersion des ultrasons dans les liquides, on avait observé que la bande interne était toujours plus intense que la bande externe, comme c'était le cas sur les photographies de Bergmann. Nous avons répété l'expérience pour montrer la variation du rapport des intensités des bandes latérales avec les fréquences excitatrices.

Aggarwal et Parthasarathy (4) ont développé récemment la théorie de Brillouin pour expliquer l'inégalité des intensités des bandes latérales d'ondes sonores de haute fréquence. Ce développement conduit au rapport R^2 de l'intensité des bandes latérales, avec :

$$R = \frac{\sin\left[\frac{\pi l\lambda}{2}\left(\frac{1}{\lambda_1}+\frac{1}{\lambda_2}\right)^2\right]}{\sin\left[\frac{\pi l\lambda}{2}\left(\frac{1}{\lambda_1}-\frac{1}{\lambda_2}\right)^2\right]} \times \frac{\left(\frac{1}{\lambda_1}-\frac{1}{\lambda_2}\right)^2}{\left(\frac{1}{\lambda_1}+\frac{1}{\lambda_2}\right)^2}.$$

DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

La méthode de photographie du spectre de diffraction employée dans ces recherches a été celle de Debye-Sears et Lucas-Biquard. Deux cristaux de 1 cm et 2 mm d'épaisseur, métallisés uniformément sur leurs deux faces, sont excités à des fréquences différentes dans du xylène à la température ambiante (27° C). Pour obtenir une

Figure n°	Haute fréquence	Basse fréquence	Rapport des intensités	
			Expérim.	Théoriques
I(*a*)	15 865	6 716	6,65	18,64
I(*b*)	15 868	6 133	5,95	20,61
I(*c*)	15 893	4 393	1,47	77,84
II(*a*)	13 024	5 552	12,73	145,78
II(*b*)	13 024	4 960	4,06	38,12
II(*c*)	13 017	3 801	3,50	10,85
III(*a*)	10 118	6 130	4,25	77,84
III(*b*)	10 012	4 393	2,36	3,08
III(*c*)	10 013	3 819	2,05	2,51

bonne résolution, on a utilisé une lentille d'environ 80 cm de distance focale. Les intensités des raies sont mesurées au microphotomètre. Le rapport des intensités des bandes interne et externe a été calculé au moyen de la formule ci-dessus. Les résultats sont donnés au tableau précédent

DISCUSSION

Les clichés reproduits sur les figures 1, 2 et 3 montrent clairement que la raie correspondant à la difference des haute et basse fréquences est toujours plus intense que la raie correspondant à la somme des deux fréquences excitatrices. Bien que le rapport des deux intensités varie avec la valeur des deux fréquences employées, comme c'est évident d'après la colonne 4 du tableau, ce rapport est toujours supérieur à 1. Les valeurs théoriques sont en parfait accord avec les valeurs observées. Il est également intéressant de noter que si la fréquence la plus élevée est maintenue constante, le rapport des intensités croît ou décroît suivant que la basse fréquence croît ou décroît. Ceci est mis en évidence par le tableau et, théoriquement, on doit toujours l'observer si $\frac{l\lambda}{2}\left(\frac{1}{\lambda_1}+\frac{1}{\lambda_2}\right)^2 < 1$. Le renversement apparent des intensités dans le cas 1 est dû au fait que cette condition n'était pas remplie dans l'expérience.

On a également observé que l'intensité de la bande interne est toujours plus grande que celle de la bande externe et que le rapport des intensités varie toujours dans le même sens que la fréquence la plus basse, la fréquence la plus élevée étant maintenue constante. L'écart quantitatif par rapport à la valeur théorique est dû en partie aux erreurs expérimentales qui accompagnent les mesures d'intensité lumineuse par la méthode photographique, et en partie aux conditions particulières pour lesquelles la théorie a été établie : valeurs relatives et réelles des deux champs sonores produisant le spectre de diffraction complexe, et nombre de raies dans le spectre de diffraction.

BIBLIOGRAPHIE

1. L. Bergmann et E. Fues. — *Z. Phys.*, 1938, **109**, 1.
2. N. S. N. Nath. — *Proc. Camb. Phil. Soc.*, 1938, **34**, 213.
3. L. Bergmann. — *Z. Hochfrequenztechn*, 1934, **43**, 83.
4. R. R. Aggarwal et S. Parthasarathy. — *Acustica*, 1951, **2**, 75.

National Physical Laboratory of India, New Delhi.

CONTRIBUTION A L'ÉTUDE DE LA RÉFLEXION SÉLECTIVE SUR LES VAPEURS DE MERCURE DE LA RADIATION DE RÉSONANCE DU MERCURE [1]

Par Jean-Louis COJAN

CHAPITRE PREMIER

INTRODUCTION

Le phénomène de réflexion sélective a été mis en évidence pour la première fois par Wood (1); un ballon de quartz, scellé, vidé, rempli d'une goutte de mercure, est porté à une température telle qu'il renferme de la vapeur de mercure sous une pression d'une dizaine de centimètres. On l'éclaire par un faisceau de lumière parallèle émis par une lampe à vapeur de mercure, il se comporte alors comme un miroir métallisé intérieurement, vis-à-vis de la radiation de résonance $\lambda = 2\,537$.

Le facteur de réflexion du dioptre formé par le quartz du ballon et la vapeur de mercure qu'il renferme est donc considérablement exalté pour la radiation de résonance, par rapport aux autres raies du spectre du mercure. Le but du travail qui va être décrit par la suite est d'étudier ce phénomène en détail et de préciser son mécanisme.

Une analyse sommaire du phénomène a fait l'objet d'un diplôme d'études supérieures (2); nous en rappellerons les conclusions qui ont servi de point de départ aux expériences qui vont être décrites.

Un montage expérimental approprié permettait d'éliminer la lumière diffusée par la face de quartz du dioptre, la lumière diffusée par la vapeur (résonance, fluorescence) et surtout la lumière régulié-

[1] Thèse présentée le 28 mai 1953 à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques.

rement réfléchie par la première face de la lame de silice (dioptre air-silice).

L'excitation du phénomène était obtenue à partir d'un arc à vapeur de mercure fonctionnant à basse pression sous haute tension (Arc Otens 25 mA, Gallois). Un monochromateur à prisme de quartz isolait et polàrisait la radiation $\lambda = 2\,537$ émise par cet arc.

Les mesures d'intensité étaient faites au moyen de plaques photographiques convenablement étalonnées.

Les diverses expériences entreprises avaient montré que :

1° L'intensité de la réflexion sélective croît avec la pression de la vapeur réfléchissante ; cependant, cette croissance est extrêmement lente quand cette pression est comprise entre 10 mm. et 80 mm.

2° Le phénomène met en jeu une interaction instantanée entre le rayonnement et les atomes de mercure, contrairement à ce qui se produirait pour un phénomène du type « résonance », qui présente une durée d'interaction $\tau \# 10^{-7}$ secondes. En effet :

a) Des champs magnétiques de plusieurs centaines de gauss, appliqués sur la cuve réfléchissante, parallèlement à la direction d'observation, ne modifient pas l'état de polarisation du faisceau réfléchi (un champ de cet ordre de grandeur suffit à dépolariser totalement, non seulement un rayonnement du type « résonance », mais encore un rayonnement du type « diffusion au voisinage de la résonance » (3)).

b) Les chocs entre atomes de mercure, qui sont notables (quelques centaines pendant 10^{-7} secondes), n'ont également aucune influence dépolarisante sur le rayonnement réfléchi. C'est d'ailleurs ce qui avait été mis en évidence par :

c) Schnettler (4), qui introduisait dans la vapeur réfléchissante, déjà à une pression de l'ordre de 760 mm., des pressions pouvant aller jusqu'à 15 kg., de gaz étranger (vapeur d'eau, hydrogène), sans constater de perturbation notable du phénomène.

3° Pour des pressions comprises entre 1 mm. et 10 mm., le phénomène est fin, en ce sens que le facteur de réflexion présente un maximum aigu dont la largeur spectrale est inférieure à celle (largeur Doppler) que l'agitation thermique confère à chaque composante hyperfine de la raie de résonance $\lambda = 2\,537$ A. Ce maximum est d'ailleurs très légèrement décalé du côté des longueurs d'onde décroissantes, par rapport au centre hyperfin correspondant.

Rump (5) avait mis en évidence le fait que la réflexion sélective, comme toute autre réflexion d'ailleurs, n'introduit aucun élargissement spectral propre ; si la lumière incidente est strictement monochromatique, la lumière réfléchie l'est aussi, et sa longueur d'onde est la même, ou encore, si la lumière incidente ne contient que des radiations comprises entre λ_1 et λ_2, il en est de même de la lumière réfléchie.

Cette propriété est d'ailleurs rigoureusement nécessaire pour que l'on puisse en théorie moléculaire rendre compte du fait qu'une onde plane incidente donne une onde réfléchie plane également (6) (7). Il faut en effet pouvoir faire interférer les ondelettes sphériques émises par les atomes de la vapeur, sous l'action d'un champ électromagnétique représentant l'onde incidente ; ceci exige que toutes ces ondelettes soient aussi monochromatiques ; s'il n'en est pas ainsi cette théorie montre clairement que tout processus créant une variation de fréquence ou un élargissement spectral, ne contribue qu'à la diffusion de la vapeur dans tout l'espace environnant, sans intervenir dans la formation de l'onde réfléchie.

Cette propriété est d'ailleurs en étroite corrélation avec le caractère instantané de l'interaction de réflexion entre les atomes de mercure et le rayonnement incident.

Plus récemment (8) (9) (10), divers auteurs ont envisagé le problème sous des aspects assez différents, sans apporter d'ailleurs de renseignements supplémentaires notables quant à l'évolution du phénomène au voisinage des centres hyperfins.

En particulier J. M. Hansen et H. W. Webb (8) faisaient des mesures d'intensité globale de la réflexion sélective en faisant varier l'angle d'incidence, qui confirmaient les mesures que nous avions obtenues, notamment en ce qui concerne le palier d'intensité déjà mentionné. Mais ces mesures manquent de précision, le phénomène analysé se compliquant des divers rayonnements parasites que nous avons déjà signalés.

H. L. Welsh, J. Kastner et A. C. Lauriston (9) (10) ont également étudié l'évolution de la réflexion sélective *lointaine* (à grande distance spectrale des centres hyperfins), pour diverses vapeurs métalliques dont le mercure. L'étude au voisinage de ces centres leur est en effet rendue impossible par le manque de résolution de leur appareil dispersif (spectrographe). Ils constatent cependant que leurs résultats sont en désaccord avec ceux que permet de prévoir la théorie classique de la dispersion, compte tenu de l'influence des chocs moléculaires et de l'effet Doppler.

D'une manière générale, on n'avait jamais étudié, à notre connaissance ce que nous appellerons première zone de réflexion sélective (pression de la vapeur comprise entre 1 et 10 mm.) ; dans la seconde zone (pression supérieure à 3 cm.) Siekmann (11) avait mis en évidence une exaltation du facteur de réflexion des composantes hyperfines de courtes longueurs d'onde, en analysant la lumière réfléchie au moyen d'un étalon interférentiel de Pérot et Fabry.

CHAPITRE II

ISOLEMENT D'UNE, OU D'UN ENSEMBLE DE RAIES SPECTRALES HYPERFINES, DANS LA RAIE DE RÉSONANCE. FILTRE MAGNÉTIQUE

Pour reprendre en détail l'étude du phénomène, en particulier dans la zone de pressions ou nous avons mis en évidence une pointe fine de réflexion sélective très voisine des centres hyperfins de résonance, une première difficulté à résoudre était d'obtenir une source de lumière émettant un profil spectral aussi étroit que possible et contenant la région intéressante.

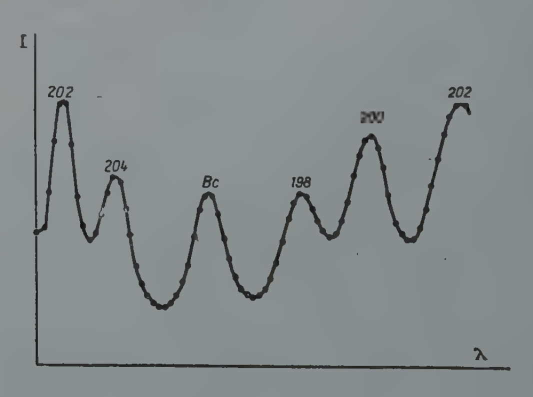


Fig. 2.

Même dans les meilleures conditions d'excitation, notre source lumineuse (Arc Gallois « Otens » de 25 mA ou 100 mA) n'émet pas la raie de résonance idéale du mercure, c'est-à-dire un ensemble de cinq composantes hyperfines dues aux divers isotopes du mercure et à leurs spins nucléaires possibles (composantes impaires), et possédant un profil spectral Doppler, correspondant à la température de la source (ici environ 80°, soit $\Delta\lambda_D = 2{,}2$ mA). Une analyse de cette raie obtenue au moyen d'un étalon interférentiel d'épaisseur 5 mm., conciliant le pouvoir de résolution et la séparation des divers ordres, donne la photographie (fig. 1) ou l'enregistrement (fig. 2, hors texte, obtenu par un procédé direct que nous décrirons par la suite) ; on constate bien la présence des cinq composantes hyperfines, mais dans leurs intervalles, subsiste un fond continu important surtout entre les quatre composantes rapprochées.

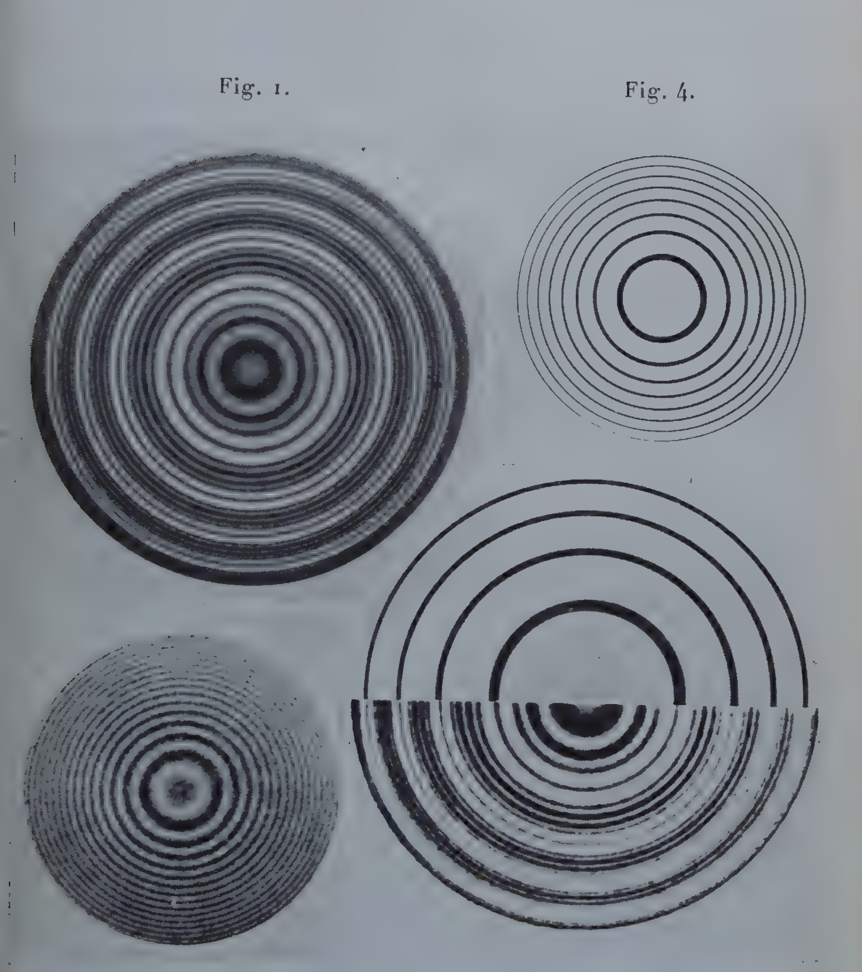


Fig. 1. Fig. 4.

Fig. 6. Fig. 5.

MASSON ET Cie, ÉDITEURS

Si, comme cela sera confirmé par la suite, le facteur de réflexion sélective présente une exaltation dans un domaine spectral très inférieur à une largeur Doppler, sans pour autant s'annuler en dehors, l'intensité réfléchie par la cuve à partir de l'excitation par la source sera due pour une très grande partie à une réflexion étrangère à la pointe, et pour une faible part à l'énergie réfléchie par cette « pointe de réflexion sélective » ; ceci sera d'autant plus gênant que le maximum du facteur de réflexion dans la pointe ne dépasse pas beaucoup le double de la valeur qu'il prend en moyenne au dehors.

Un moyen d'accroître la part de la réflexion sélective dans l'énergie réfléchie est d'éliminer du faisceau incident le plus possible de régions spectrales inutiles. En outre pour étudier le comportement des divers isotopes du mercure, il faut encore ne laisser tomber sur la cuve à réflexion que la radiation émise par cet isotope.

Nous sommes parvenus à ces résultats en employant un montage (12) qui représente un perfectionnement d'un procédé utilisé par Mrozowski (13).

On soumet une cuve d'absorption à vapeur de mercure à un ou plusieurs champs magnétiques et on utilise pour déterminer leurs valeurs la figure de décomposition Zeeman de la raie 2537, donnée par Buhl (14) (fig. 3). Si ces valeurs sont bien ajustées, on réalise un filtre qui ne laisse passer qu'une ou deux composantes hyperfines de la raie de résonance, à condition qu'un montage convenable ne laisse passer que les radiations de polarisation perpendiculaires aux champs magnétiques.

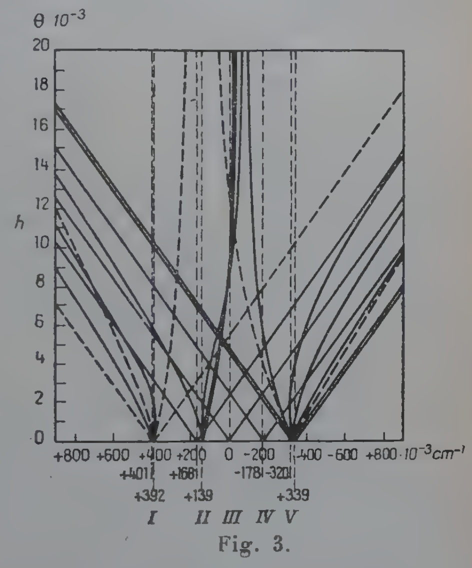


Fig. 3.

Avec un seul champ de 2 200 gauss, on prévoit de cette manière un filtre ne transmettant que λ_{Bc}.

L'expérience confirme ces prévisions (fig. 4, hors texte) : nous donnons ici un montage photographique (fig. 5, hors texte) représentant d'un côté du diamètre l'analyse par un étalon de 5 mm. de la structure globale émise par la source S et de l'autre, la structure de cette émission après passage dans le filtre magnétique. La raie λ_{Bc} ainsi

isolée représente au moins 95 o/o de l'énergie sortant du filtre, comme des mesures sommaires d'intensité nous l'ont montré. Cette radiation permet d'obtenir des anneaux d'interférence avec un étalon de 10 cm. d'épaisseur, sans qu'on observe de recouvrement des divers ordres (fig. 6, hors texte), on peut sur ce cliché, mesurer la largeur spectrale de la raie ainsi isolée, on la trouve égale à environ 2 mA, soit la largeur Doppler de la raie de résonance.

Le filtre magnétique fournit donc une radiation aussi fine qu'une lampe à résonance qui n'émettrait que λ_{Bc} ; l'ordre d'interférence élevé (800 000) qu'elle permet d'obtenir accroît beaucoup le pouvoir de résolution de l'étalon de Pérot et Fabry, nous en profiterons pour étudier la structure de la réflexion sélective dans la région où elle présente une pointe plus fine qu'une largeur Doppler.

Avec $H_1 = 7\,000$ gauss et $H_2 = 5\,650$ gauss on obtient une raie λ_{202} très monochromatique ayant une finesse du même ordre que la raie λ_{Bc} précédemment isolée.

Le filtre magnétique est très sensible aux variations de H, donc à l'intensité du courant magnétisant. Pour assurer cette stabilité on branche en parallèle sur l'électroaimant, suivant un schéma classique, une batterie tampon, dont la force électromotrice est maintenue constante en réglant le potentiomètre de manière à ce que le courant débité soit en moyenne nul.

CHAPITRE III

ÉVOLUTION GÉNÉRALE DE LA RÉFLEXION SÉLECTIVE EN FONCTION DE LA PRESSION (15)

Le dispositif expérimental employé est représenté sur la figure 7.

La source S émet, avec une polarisation perpendiculaire à H, l'une des deux raies λ_{Bc} ou λ_{202}. On forme un faisceau de lumière parallèle au moyen de la lentille L_1 en silice fondue (qui ne modifie pas la polarisation de la lumière). Ce faisceau peut venir former une image sur la photocathode d'un multiplicateur d'électrons RCA 1P28 par deux voies différentes :

La voie A, traverse la lame à face parallèle M_1, en silice fondue, éventuellement un quartz Q taillé perpendiculairement à son axe optique, faisant tourner le plan de polarisation de la lumière ($\lambda = 2\,537$) de 90° ; le rayonnement est réfléchi sur la cuve à réflexion sélective C, traverse une lame M_2 et vient former une image S′ sur la photocathode du multiplicateur, en traversant la lentille L_2.

— La voie B se réfléchit sur M_1, puis sur un miroir aluminé M qui renvoie la lumière sur M_2 et de là sur L_2, il se forme une

image S″. Un réglage approprié de l'orientation des miroirs M_1, M, M_2 permet d'obtenir la coïncidence des deux images S′ et S″.

— La cuve à réflexion sélective C est constituée de la manière suivante : une lame prismatique P, en silice fondue (angle voisin de 6°), forme la face d'entrée ; le faisceau réfléchi par le dioptre silice-air est nettement séparé et peut être éliminé du faisceau réfléchi sélectivement par le dioptre D, silice-vapeur de mercure. Cette lame P est soudée à un tube de silice recourbé à angle droit, de manière à former un queusot A qui sera disposé verticalement, et dans lequel sera introduit par distillation sous un vide poussé, une goutte de mercure ; cet appendice est entouré d'un tube de cuivre servant de support à une résistance chauffante, qui permet de maintenir, au voisinage de la goutte de mercure et le long de A, une température T, que l'on mesure au moyen d'un couple thermo-électrique. Cette température T est maintenue inférieure à celle du reste de la cuve, ce qui permet, en évitant la condensation de gouttelettes de mercure sur d'autres parois du tube, de définir avec certitude la pression p de la vapeur de mercure qui règne dans l'ensemble de C (principe de la paroi froide).

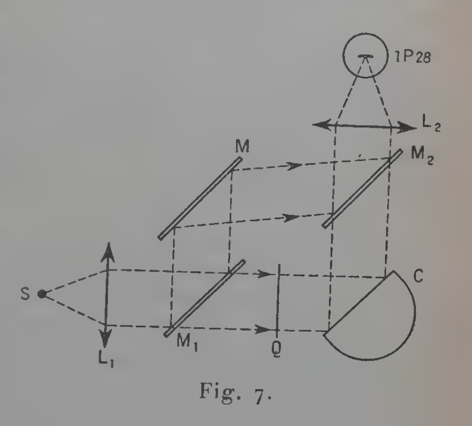


Fig. 7.

Ce dispositif est placé dans une enceinte calorifugée au moyen de poudre d'amiante imprégnée de silicate de soude, qui se transforment au premier chauffage en un ciment réfractaire.

Des résistances chauffantes R sont placées dans cette matière réfractaire au-dessus et au-dessous du tube. On dispose d'entrées et de sorties de lumière ; ce sont des tubes en cuivre sur lesquels on enroule une résistance électrique dont le chauffage est maintenu suffisant pour éviter la condensation du mercure sur le dioptre réfléchissant. Le courant qui passe dans R est tel que T soit la température du point froid ; pour une valeur fixe de ce courant, on peut faire varier T en modifiant le courant de chauffage du queusot dans les limites telles que l'on n'observe pas de condensation du mercure dans la partie de C extérieure au système de chauffage de l'appendice.

Dans cette série d'expériences, la lumière tombe sur C sous l'incidence brewstérienne relative au dioptre D, quand la pression p de la vapeur de mercure est nulle, soit pour le dioptre silice-vide. A froid, pour une polarisation convenable de la lumière incidente (vecteur E

dans le plan d'incidence, soit parallèle à H), l'intensité de la lumière réfléchie est nulle. Au fur et à mesure que la pression croît dans le tube, le phénomène de réflexion sélective apparaît et l'intensité réfléchie croît à partir de O, on décèle donc uniquement le phénomène ; au contraire, pour une polarisation donnant un champ électrique E perpendiculaire au plan d'incidence, le facteur de réflexion à froid de D se calcule par les formules de Fresnel et vaut : 0,19 ; quand le phénomène de réflexion sélective commence il provoque une variation du facteur de réflexion petite devant 0,19 qui passe donc inaperçue au contraire de ce qui a lieu dans le cas envisagé plus haut, où c'est cet accroissement lui-même qui est mesuré directement, toute l'intensité réfléchie étant due uniquement au phénomène dont nous voulons entreprendre l'étude.

En fait, l'introduction du quartz Q ne donne qu'une polarisation en moyenne dans le plan d'incidence : il reste une fraction α de la lumière incidente qui présente une polarisation perpendiculaire au plan d'incidence, soit β la fraction polarisée dans le plan d'incidence :

$$\alpha + \beta = 1.$$

Nous résumons les propriétés optiques des surfaces rencontrées par les voies A et B dans le tableau suivant :

Surface	Facteur de réflexion	Facteur de tranmission	
Lame M_1 . .	μ_1	m_1	
Quartz Q . .		τ	
Face C . . .		$t\,(\updownarrow)$	$t'\,\odot$
Lame M_2 . .	μ_2	$m_2\,(\updownarrow)$	$m'_2\,\odot$
Miroir M . .	μ		

(La notation $\updownarrow$ indiquant que le vecteur électrique de l'onde incidente est normal au plan d'incidence sur D, la notation $\odot$ qu'il lui est coplanaire).

Quand on intercepte la voie A, le galvanomètre intercalé dans le circuit-plaque du multiplicateur donne une indication z proportionnelle à :

$$z = \int I(\lambda)\mu_1\mu\mu_2 d\lambda$$

$I(\lambda)$ étant la fonction représentant le profil spectral énergétique de la source S ; quand on intercepte la voie B sans le quartz Q on obtient une mesure :

$$x = \int I(\lambda) m_1 t^2 m_2 r(\lambda) d\lambda$$

$r(\lambda)$ étant le facteur de réflexion, pour la longueur d'onde λ, du dioptre D, silice-vapeur de mercure à la pression p (définie par la température T) d'où la quantité :

$$X = \frac{x}{\varepsilon} = \frac{m_1 t^2 m_2}{\mu_1 \mu \mu_2} \frac{\int I(\lambda) r(\lambda) d\lambda}{\int I(\lambda) d\lambda}$$

et la valeur moyenne R du facteur de réflexion sélective du dioptre D, à la pression p de l'expérience, et pour une polarisation normale au plan à incidence, est donnée par :

$$R = r_0 \frac{X}{X_0}$$

r_0 étant le facteur de réflexion du dioptre D, pour une pression nulle, que l'on obtient en appliquant les formules de Fresnel au dioptre silice-vide, et X_0 la valeur de X pour une pression nulle de la vapeur de mercure du tube à réflexion sélective (obtenue en le laissant prendre la température ambiante).

Quand on interpose le quartz Q, le galvanomètre donne la moyenne y :

$$y = \int I(\lambda)[\alpha m_1 t^2 m_2 \tau r(\lambda) + \beta \tau m_1 t'^2 m'^2 \rho(\lambda)] d\lambda$$

$\rho(\lambda)$ étant le facteur de réflexion du dioptre D, pour la pression de vapeur de l'expérience, et une polarisation dans le plan d'incidence de la lumière. Le quotient : $Y = \frac{y}{Z}$, vaudra :

$$Y = \alpha \frac{m_1 t^2 m_2 \tau}{\mu_1 \mu \mu_2} \cdot \frac{\int I(\lambda) r(\lambda) d\lambda}{\int I(\lambda) d\lambda} + \beta \frac{m_1 t'^2 m_2' \tau}{\mu_1 \mu \mu_2} \cdot \frac{\int I(\lambda) \rho(\lambda) d\lambda}{\int I(\lambda) d\lambda}.$$

On voit facilement que $\bar{\rho}$ étant la valeur moyenne de $\rho(\lambda)$ à l'intérieur du profil spectral incident, on a :

$$\begin{cases} R = r_0 \dfrac{X}{X_0} \\ \bar{\rho} = r_0 \dfrac{X_0 Y - Y_0 X}{A^2 B(\tau X_0 - Y_0)} \end{cases}$$

à partir des mesures X, Y et de leurs valeurs X_0, Y_0 à pression nulle.

La quantité $\bar{\rho}$ donne directement une valeur moyenne de la réflexion sélective, dépouillée de tous les phénomènes parasites qui pouvaient la masquer. Nous avons obtenu les résultats expérimentaux suivants :

Nous avons reporté sur la figure 8 la courbe représentant en coordonnées logarithmiques les variations de $\bar{\rho}$ avec la pression.

Dans le calcul de ρ le terme X n'intervient que comme correction, on a en effet numériquement :

$$\bar{\rho} = 0{,}0188Y - 0{,}00118X$$

ce qui justifie la faible précision du calcul correctif que nous venons d'indiquer.

L'examen de la courbe 8 fournit les résultats suivants :

1° Le phénomène de réflexion sélective commence pour une pression de vapeur de mercure un peu inférieure au millimètre, c'est-à-dire vingt fois plus petite que celle pour laquelle Wood et tous les auteurs ultérieurs l'avaient observé.

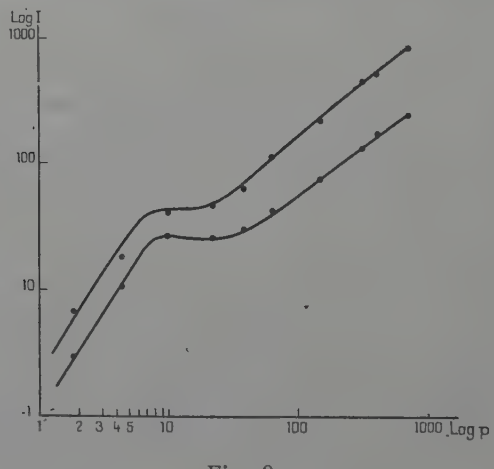


Fig. 8.

2° L'allure de la courbe 8 incite à envisager deux intervalles de pression.

Intervalle *a*) : $1 \text{ mm} < p < 10 \text{ mm}$
Intervalle *b*) : $10 \text{ mm} < p$.

Dans l'intervalle *a*), la réflexion sélective croît sensiblement comme le carré de la pression ; dans l'intervalle *b*), elle marque d'abord un palier d'intensité, puis ($p > 30$ mm), recommence à croître, sensiblement comme la pression.

Nous verrons par la suite que dans l'intervalle *a*), le phénomène est fin par rapport à la largeur Doppler et que dans l'intervalle *b*), il est du même ordre de largeur.

3° Il ne faut pas attacher une valeur particulière au fait qu'à basse pression la raie λ_{Bc} semble en moyenne plus réfléchie que la raie λ_{202},

bien que dans l'émission de résonance du mercure, l'importance respective de leurs deux contributions soit inversée. En effet si la réflexion sélective intéresse pour ces deux raies un intervalle spectral étroit par rapport à leur largeur Doppler, qui est celle que permet d'atteindre le filtre magnétique, il suffit qu'au voisinage des radiations réfléchies sélectivement sur λ_{202}, ce filtre laisse passer un peu plus de lumière non réfléchie que sur λ_{Bc}, pour que la valeur moyenne $\bar{\rho}$ soit plus faible sur λ_{202} que sur λ_{Bc}, la quantité Z augmentant sans que Y soit sensiblement affectée.

4° A haute pression (région *b*) au contraire, où la réflexion sélective évolue lentement à l'échelle de la largeur Doppler, nos courbes ont une signification relative, et on peut déjà conclure, comme nous le verrons par la suite. que le facteur de réflexion de la vapeur de mercure est plus grand pour λ_{Bc} que pour λ_{202}.

La suite des expériences découle de ces constatations et comprendra :

L'étude de *a*) par un procédé d'analyse fin.

L'étude de *b*) par un procédé d'analyse moins fin mais partant sur un domaine spectral plus étendu.

CHAPITRE IV

ÉTUDE DE LA PREMIÈRE ZONE DE RÉFLEXION SÉLECTIVE

1. Analyse interférentielle. — Nous avons entrepris l'étude détaillée de la réflexion sélective dans les deux zones de pression que nous venons de définir. Les résultats rappelés en introduction semblaient indiquer que, dans la première zone ($p < 10$ mm.), le phénomène présente une évolution rapide dans un domaine spectral $\Delta\lambda_R$ petit par rapport à la largeur Doppler $\Delta\lambda_D$:

$$\Delta\lambda_R \ll \Delta\lambda_D.$$

Pour le montrer expérimentalement, il était donc nécessaire de faire appel à un procédé d'analyse assez fin pour résoudre une faible fraction de largeur Doppler. Nous avons employé en premier lieu un étalon interférentiel de Pérot et Fabry. La longueur d'onde ultraviolette $\lambda = 2537$ A, utilisée, impose d'employer des galets de quartz recouverts d'une couche semi-réfléchissante d'aluminium. Il serait infiniment préférable d'utiliser des couches multiples du type Dufour (16), malheureusement il n'existe pas encore dans l'ultraviolet à notre connaissance de matériaux adaptés à leur construction.

Etudions rapidement la différence de marche δ qu'il est nécessaire

d'utiliser pour obtenir la résolution désirée ; elle est proportionnelle à l'épaisseur e de l'étalon et si r est l'angle des rayons considérés avec la normale aux galets :

$$\delta = 2e \cos r \text{(en prenant } n = 1 \text{ pour indice de l'air).}$$

En un point du plan focal de l'objectif, qui correspond à un maximum d'ordre k pour la raie λ, une radiation de longueur d'onde $\lambda + \Delta\lambda$ présente un ordre $k + \Delta k$, défini par :

$$\delta = 2e \cos r = k = (k + \Delta k)(\lambda + \Delta\lambda).$$

Soit en valeurs absolues :

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = \frac{\Delta k}{k} .$$

En admettant que la couche semi-réflectrice permette d'atteindre 1/30 de frange, ce qui est un maximum, il faudra pour résoudre $\Delta\lambda = 0,1$ mA soit 1/20 $\Delta\lambda_D$ et puisque $k \# \frac{2e}{\lambda}$:

$$e \geqslant \frac{\lambda^2}{60\Delta\lambda} \# 10 \text{ cm.}$$

Il nous faut donc une épaisseur minimum d'étalon de 10 cm. ; d'autre part, afin d'éviter la superposition des divers ordres, il faut limiter la largeur d'intervalle spectral admis sur l'interféromètre à : $30 \times 0,1 = 3$ mA. C'est chose possible avec l'une des raies λ_{Bc} ou λ_{202} isolées par le séparateur magnétique (ce dont on se rend compte justement en vérifiant que les anneaux d'interférence ne sont pas brouillés) ; mais il était impossible d'utiliser la raie émise directement par la source (Elle donne un profil spectral étendu sur 50 mA, ce qui limite à 6 mm. au maximum, l'épaisseur de l'étalon utilisable sans superposition des ordres). Mais pour espérer résoudre effectivement 1/30 de frange, un calcul simple montre que même en supposant que la dilatation de l'invar compense la dilatation isobare de l'air, il reste que la pression ne doit pas varier de plus de 0,1 mm. pendant la durée de l'expérience.

Avec notre montage les poses photographiques duraient environ 20 minutes ; pour pouvoir espérer résoudre 0,1 mA, il fallait donc opérer dans des conditions météorologiques exceptionnellement stables.

Même en ne tentant la mesure que pendant des périodes où la pression mesurée au baromètre enregistreur n'avait pas varié au cours des heures précédentes d'une quantité appréciable, seuls quelques clichés (1 sur 5) nous ont donné des résultats positifs.

Le dispositif expérimental était le suivant :

La source S, placée au foyer d'une lentille L, forme un faisceau de

lumière parallèle qui vient se réfléchir, sous une incidence quasi normale, sur la cuve à réflexion sélective (C) ; l'étalon interférentiel est placé sur le trajet du faisceau réfléchi, et une lentille L_2 donne dans son plan focal le système d'anneaux d'interférences, dessiné sur l'image de S. Cette cuve (C) ne diffère de la précédente que par sa fenêtre unique, normale au dioptre réfléchissant, et qui sert à la fois à l'entrée et à la sortie de la lumière.

Les clichés les plus nets furent ensuite examinés au moyen d'un microphotomètre enregistreur, en prenant soin d'enregistrer le noircissement de plusieurs anneaux consécutifs ; nous donnons (fig. 9) un enregistrement particulièrement favorable.

Leur examen montre que dans la zone de pressions $p < 10$ mm. pour laquelle tous ces enregistrements ont été faits, le facteur de

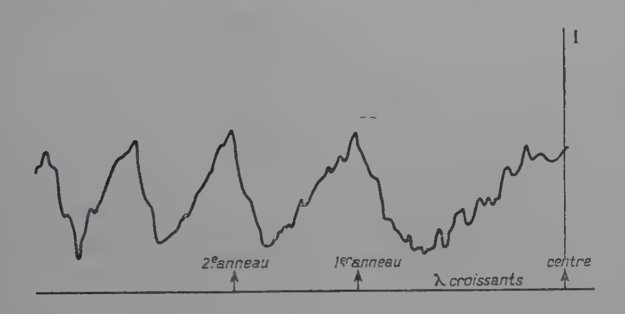


Fig. 9.

réflexion du dioptre vapeur de mercure, silice, subit une exaltation au voisinage du centre de la raie de résonance, dans un domaine spectral étroit par rapport à la largeur Doppler.

On peut chiffrer approximativement cette largeur, en la mesurant à la base de la pointe de réflexion sélective ; à 160° (pression : 4,19 mm.) elle est de l'ordre du dixième (0,2 mA) de la largeur Doppler (2 mA).

De plus, abstraction faite de cette pointe, le facteur de réflexion présente une dissymétrie marquée, il décroît beaucoup plus vite vers les grandes longueurs d'onde que vers les petites longueurs d'onde, de part et d'autre du centre hyperfin de résonance.

Ces résultats à la limite de la résolution de notre étalon vont être précisés et complétés par une autre méthode, que nous allons décrire.

2. Autoanalyse magnétique (17). — La lumière émise par le séparateur magnétique, réglé pour l'isolement de λ_{202}, forme un faisceau parallèle en traversant une lentille de silice fondue L, une lame

mince cristalline $\frac{\pi}{4}$ pour 2537 A convenablement orientée, le polarise circulairement.

Le faisceau tombe ensuite sous une incidence très voisine de la normale sur une cuve à réflexion sélective C, du type précédent. On établit un champ magnétique H, perpendiculairement au dioptre silice-vapeur de mercure, au moyen d'une paire de bobines d'Helmoltz. La cuve C est remplie de vapeur de mercure à une pression p_1, définie par la température T_1 de son queusot. Le faisceau réfléchi peut, soit :

a) traverser une lentille L′ et venir former une image sur la photo-cathode d'un multiplicateur 1P28 (fig. 10*a*) ;

b) être encore une fois réfléchie sélectivement par une cuve C_2 analogue à la première, portée à une température T_2, mais sans champ magnétique normal au dioptre réfléchissant. Le faisceau traverse ensuite une lentille L′ et vient se focaliser sur la photo-cathode (fig. 10*b*).

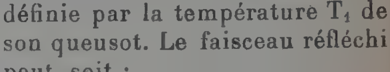


Fig. 10*a*-*b*.

Grâce au champ H dont l'intensité peut prendre des valeurs connues, entre 0 et 500 gauss, et qui peut être inversé, la lumière polarisée circulairement, est réfléchie suivant la loi :

$$\rho = \rho(\lambda + x)$$

$\rho(\lambda)$ étant le facteur de réflexion en champ nul, et x le déplacement Zeemann de la raie λ_{202},

$$x_{\text{mA}} = 4{,}51 \, . \, 10^{-3} \, \text{H}_{\text{gauss}}$$

en faisant varier H, on déplace donc le profil de réflexion sélective d'une quantité proportionnelle au courant des bobines, sur un intervalle de $\pm$ 2 mA environ, autour de sa position en champ nul. Cet intervalle de 4 mA est nettement supérieur à la largeur spectrale (2 mA) de la radiation incidente. Si la finesse de la réflexion sélective est réelle, on explore donc, soit :

a) le profil spectral émis par le filtre magnétique,

b) le profil spectral réfléchi par C_2, c'est-à-dire une raie déjà réfléchie sélectivement.

Ce procédé, en plus de la vérification de la finesse de la pointe de réflexion sélective, permet d'en évaluer la largeur et d'en étudier les variations en fonction de la pression p de la vapeur réfléchissante.

Dans la série d'expériences *b)*, la mesure directe de l'intensité du courant anodique du multiplicateur 1P28 est difficile à obtenir avec une précision suffisante au moyen du galvanomètre, sensible à un courant de 7.10^{-10} A, dont nous disposions (1 mm. de déviation du spot pour un courant de 7.10^{-10} A). L'emploi d'un petit amplificateur continu (gain de l'ordre de 10) s'est révélé nécessaire. Il nécessite une alimentation haute tension stabilisée, et un chauffage du filament de la lampe amplificatrice, également constant, afin d'éviter les fluctuations et les dérives du courant d'anode de la lampe amplificatrice.

Expériences a). — Soient $I(\lambda)$ la répartition spectrale de la lumière émise par le filtre autour de λ_{202}, et $\rho(\lambda)$ le facteur de réflexion sélective. La cellule multiplicatrice fournit, en fonction de x, déplacement Zeemann dû au champ H, une lecture $f(x)$;

$$f(x) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(\lambda)\rho(\lambda + x)d\lambda.$$

Le facteur de réflexion $\rho(\lambda)$ doit tendre vers 0,04, facteur de réflexion normal du dioptre silice-vide, quand $\lambda + x$ est très différent de λ_{202} (quelques largeurs Doppler) et par conséquent :

$$f(x) \to 0{,}04 \int_{-\infty}^{+\infty} I(\lambda)d\lambda$$

quand $x \to \infty$.

De même quand la pression de vapeur de mercure dans C_1 est très faible, $f(x)$ est égal quel que soit x, à la constante :

$$0{,}04 \int_{-\infty}^{+\infty} I(\lambda)d\lambda.$$

La fonction :

$$F(x) = \frac{f(x) - f(\infty)}{f(0)}$$

caractérise donc mieux que $f(x)$ le phénomène de réflexion sélective ; c'est elle que nous reporterons sur les graphiques.

Nous noterons enfin qu'une erreur dans la détermination de $f(\infty)$ ne fait que déplacer, par translation parallèle à l'axe des ordonnées, la courbe représentant les variations de $f(x)$ en fonction de x, ce qui est de peu d'importance quant aux renseignements que cette courbe donne sur l'évolution du phénomène.

Dans le cas *a*), nous avons obtenu le réseau de courbes suivant (fig. 11), chacune correspondant à une température T, particulière, indiquée en regard. Nous avons ajouté, aux mesures expérimentales en VII, une courbe donnant le profil spectral dû à l'agitation thermique, de la composante hyperfine λ_{202} de la raie de résonance du mercure à la température de l'arc ($\Delta\lambda_D = 2 \times 1{,}2$ mA).

L'examen des résultats montre clairement que la réflexion sélective présente une pointe fine à l'échelle Doppler ; en effet la courbe V par exemple qui correspond à l'analyse de la raie λ_{202}, émise par le séparateur (dont nous avons déjà vu qu'elle s'étend sur un intervalle Doppler), par la réflexion sélective à 140°, présente une variation comparable à celle de la lumière incidente, c'est-à-dire que la largeur de la pointe de réflexion sélective exploratrice, que l'on met du même coup en évidence, n'ajoute à peu près aucun élargissement à la largeur propre au profit examiné. Si au contraire, cette pointe de

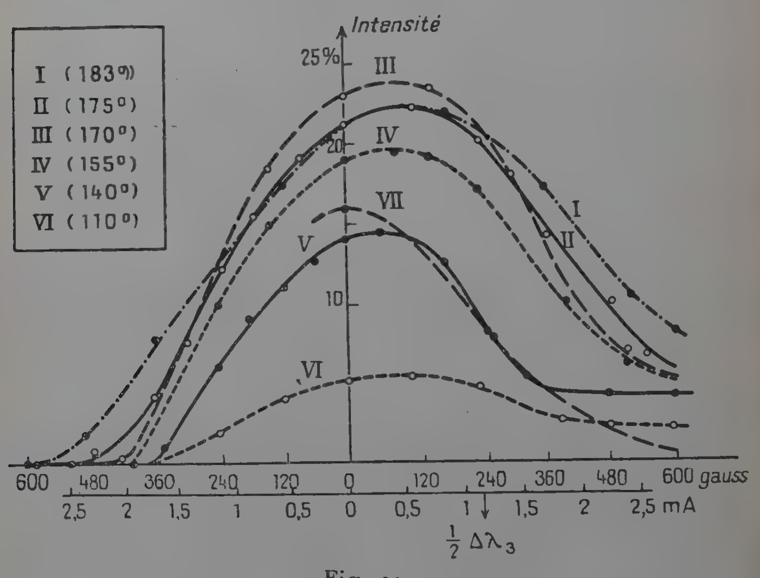


Fig. 11.

réflexion sélective avait une largeur de l'ordre de la largeur Doppler, la courbe V aurait une largeur d'au moins deux fois cette largeur Doppler.

En première approximation, la largeur des courbes de la figure 11 est la somme des largeurs $\Delta\lambda_D$ de la raie analysée et de la largeur $\delta\lambda_T$, de la pointe de réflexion sélective à la température T de l'expérience.

L'examen comparatif des courbes montre que $\delta\lambda_T$ est une fonction croissante de la température T, et aussi que la pointe de réflexion sélective atteint une valeur maximum aux environs de $T = 170°$ (courbe III) ; au delà de cette température, l'intensité de la réflexion varie peu, sa largeur $\delta\lambda_T$, continuant cependant à croître.

L'examen des courbes V et VI montre aussi que jusqu'à 140° la

largeur $\delta\lambda_T$ est inappréciable à la précision de nos mesures (elle est donc inférieure à environ 0,05 mA) ; ceci nous indique qu'à la température de $T_0 = 140^\circ$, nous avons déjà une pointe de réflexion sélective d'intensité appréciable, avec une finesse assez grande pour que notre procédé constitue une bonne méthode d'analyse spectrale (précision de 0,1 mA).

Si nous désignons par $\delta\lambda_T$ la largeur spectrale de la pointe de réflexion sélective à la température T nous pouvons poser :

$$\delta\lambda_T = \delta\lambda_{110} + \delta_1\lambda$$

et nous obtenons une évaluation approximative de $\delta_1\lambda$, en mesurant la distance qui sépare parallèlement à l'axe des longueurs d'onde, sur la figure 11, les points où les diverses courbes se détachent de cet axe, à partir du point d'où se détache la courbe VI. On peut représenter ces résultats sur un graphique (fig. 12). Cette mesure est cependant assez grossière, elle sera précisée dans la série d'expériences *b*.

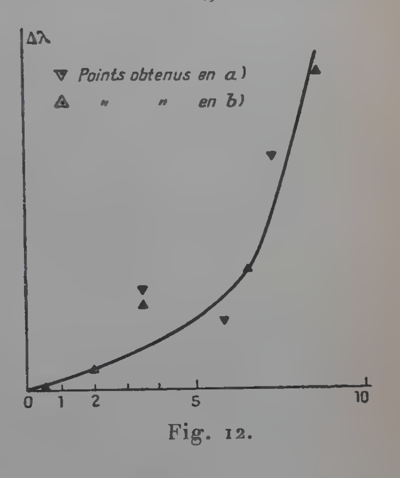


Fig. 12.

En effet, pour constituer le réseau de courbes 11, nous avons dû nous fixer $F(\infty)$ un peu arbitrairement : le champ magnétique H appliqué à la cuve C peut varier de — 500 g à + 500 g et déplacer le centre hyperfin de — 2 mA à + 2 mA. Or aux deux extrémités du balayage les valeurs de $F(x)$ obtenues ne sont pas égales ; nous avons pris arbitrairement $F(\infty) = F(+2)$ ce qui ne modifie pas la forme des courbes. En fait, comme l'allure des courbes conduit à le supposer, et comme le calcul le confirmera, il y a encore une réflexion notablement différente de celle du dioptre vide-silice, pour $x = \pm 2$ mA, et on devrait plutôt prendre $F(\infty) = \frac{1}{2}[F(+2) - F(-2)]$.

Tout se passe en effet comme si, dans nos expériences, le profil de réflexion sélective était la superposition de deux termes constitués :

α) l'un d'un profil fin de largeur $\delta\lambda_T$;

β) l'autre d'un profil de largeur $k\Delta\lambda_D$ ($k = 2$ à 3), l'effet de balayage étant dû aux contributions de ces deux termes.

Le terme α) ne joue aucun rôle pour $|x| = 2$: la pointe de réflexion sélective, voisine du centre hyperfin est déplacée d'une quantité telle qu'elle n'agit que sur des radiations incidentes d'intensité nulle (largeur de $I(\lambda)$: 2 mA).

Le terme β) présente lui une influence notable, et le fait d'obtenir des courbes lentement variables pour $x = \pm 2$, montre que ce terme est sensiblement maximum pour $\lambda - \lambda_{202} = -2$ mA et sensiblement minimum pour $\lambda - \lambda_{202} = +2$ mA. En prenant pour courbe représentative de $\rho(\lambda)$ une courbe du type (13) on rend compte de la différence de $f(2)$ et de $f(-2)$ et de l'allure même des courbes $f(x)$. Les prévisions théoriques confirmeront cette manière de voir.

On peut se représenter l'influence du terme β) en admettant que ce terme qui présente une amplitude large de variation par rapport à la raie incidente $I(\lambda)$ est analysé par celle-ci, au cours de leur déplacement relatif, d'une manière analogue à celle dont la pointe α) analysait $I(\lambda)$.

Expériences b) (fig. 14). — Le profil analysé est maintenant le profil émis par S, réfléchi par C_2 soit :

$$I(\lambda)\rho_{T_2}(\lambda) ;$$

il comprend donc une pointe fine due à $\rho_{T_2}(\lambda)$, et il est analysé par $\rho_{T_1}(\lambda + x)$, profil de réflexion sélective de C_1 à la température T_1, déplacé par le champ magnétique H d'une quantité x par rapport à sa position en champ nul. Pour des valeurs de x, petites devant la largeur Doppler, on obtient l'analyse de la pointe fine de réflexion sélective $\rho_{T_2}(\lambda)$ par la pointe fine de $\rho_{T_1}(\lambda)$, pour des x plus grands, on obtient, comme en a), l'analyse de la fraction large (β) de $\rho_{T_1}(\lambda)$ par le profil fin à son échelle de la répartition énergétique $\rho_{T_2}(\lambda)I(\lambda)$, qui ne s'étend que sur un intervalle spectral de l'ordre de 2 mA, c'est ce qui explique que comme en a), on obtienne, pour les valeurs maximum que nous pouvons donner à x, des intensités

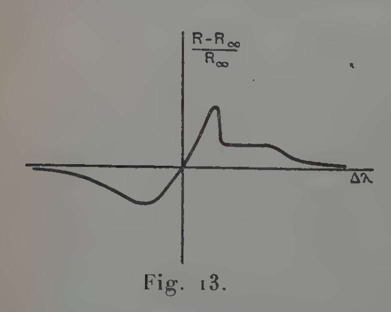


Fig. 13.

$$G(x) = \int I(\lambda)\rho_{T_2}(\lambda)\rho_{T_1}(\lambda + x)d\lambda$$

qui ne sont pas égales à $\frac{4}{100}\int I(\lambda)\rho_{T_2}(\lambda)d\lambda$, mais sensiblement également écartées en plus et en moins de cette valeur limite.

L'intérêt essentiel de cette série d'expériences réside (fig. 14) dans le fait que l'on obtient dans $G(x)$, ou mieux,

$$g(x) = \frac{G(x) - G(\infty)}{G(o)}$$

une pointe centrale fine, qui résulte de l'analyse de $\rho_{T_2}(\lambda)$ par $\rho_{T_1}(\lambda)$ car au voisinage de $\lambda = \lambda_{202}$, soit dans le domaine exploré par de petites valeurs de x, l'intensité émise par la source peut être regardée comme constante, en première approximation. On peut conférer à cette pointe de $g(x)$, la largeur :

$$\delta\lambda_{T_1} + \delta\lambda_{T_2}.$$

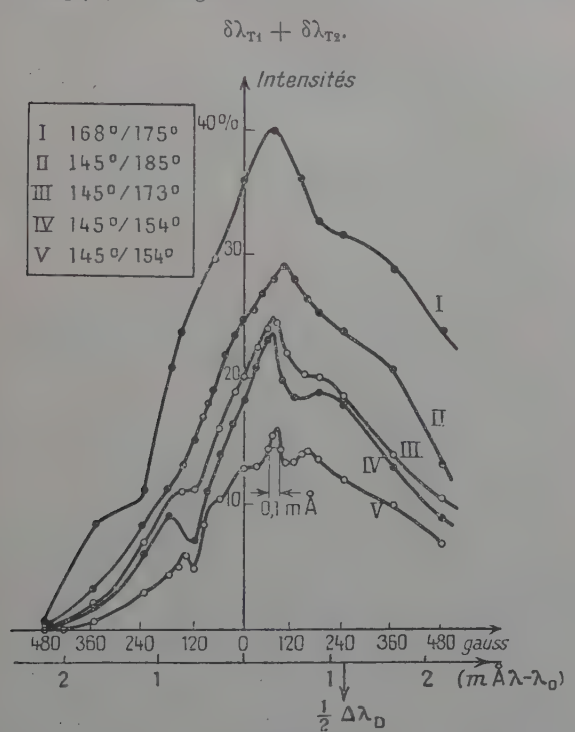


Fig. 14.

Les courbes 2, 3, 4, 5 correspondent à un profil explorateur fin ($\delta\lambda_{145}$) et permettent d'obtenir les équations :

$$2\delta\lambda_{145} = 0,1 \text{ mA}$$
$$\delta\lambda_{145} + \delta\lambda_{185} = 1 \text{ mA}$$
$$\delta\lambda_{145} + \delta\lambda_{173} = 0,40 \text{ mA}$$
$$\delta\lambda_{145} + \delta\lambda_{154} = 0,30 \text{ mA}$$

desquelles on déduit :

$$\delta\lambda_{185} = 0,95 \text{ mA}$$
$$\delta\lambda_{173} = 0,35 \text{ mA}$$
$$\delta\lambda_{154} = 0,25 \text{ mA}$$
$$\delta\lambda_{145} = 0,05 \text{ mA}$$

Cette fois-ci les largeurs sont mesurées avec une bonne précision et permettent de construire une courbe représentative des variations de $\delta\lambda_T$ en fonction de T ou de p (fig. 12) sur laquelle nous avons reporté les points obtenus en a).

A partir de cette courbe nous obtenons à titre de vérification :

$$\delta\lambda_{168} + \delta\lambda_{175} \cong 1,1 \text{ mA}$$

en bon accord avec notre courbe I de la figure 14.

Conclusion expérimentale de la première partie.

Pour une pression p inférieure à 1 cm.

1° Le phénomène de réflexion sélective commence dès que la pression atteint quelques fractions de millimètre, ce qui définit une zone de pressions que les divers auteurs qui ont étudié le phénomène n'avaient pas envisagée.

2° C'est un phénomène énergétiquement petit ; le facteur de réflexion ne diffère jamais beaucoup de sa valeur limite, qu'il atteint quand on réalise le dioptre silice-vide $\left(\rho = \frac{4}{100}\right)$.

3° La courbe représentative du pouvoir réflecteur s'écarte de cette droite asymptote $\rho = 0,04$ d'une quantité somme de deux termes :

α) un terme à variation limitée à un petit intervalle spectral $\delta\lambda_T$ beaucoup plus petit qu'une largeur Doppler ;

β) un terme à variation limitée à un intervalle de l'ordre de quelques largeurs Doppler de part et d'autre du centre hyperfin ; le facteur de réflexion dû à ce terme étant supérieur à 0,04 du côté des grandes longueurs d'onde, inférieur à 0,04 du côté des courtes longueurs d'onde (fig. 13).

4° Nous avons (fig. 12) évalué les variations de $\delta\lambda_T$ en fonction de T (ou de p).

5° Il ne semble pas que la largeur du terme β) soit sensiblement affectée par les variations de température.

6° Le procédé utilisé en a) ou b) correspond à une analyse spectrale de pouvoir de résolution très élevé ; pour une cuve à 145° on a :

$$R = \frac{\lambda}{\delta\lambda_{145}} = \frac{2,5 \cdot 10^3}{0,5 \cdot 10^{-4}} = 5 \cdot 10^7.$$

Ce pouvoir de résolution permet d'atteindre des largeurs spectrales de l'ordre de 50 largeurs naturelles.

CHAPITRE V

ÉTUDE DE LA SECONDE ZONE DE RÉFLEXION SÉLECTIVE

Elle est définie par la condition $p > 10$ mm., relative à la pression de la vapeur de mercure renfermée dans la cuve à réflexion sélective.

C'est dans ce domaine de pressions que les divers auteurs ont fait leurs expériences.

La première constatation expérimentale que nous avons faite a été la disparition du phénomène fin (α). Nous nous en sommes aperçu en

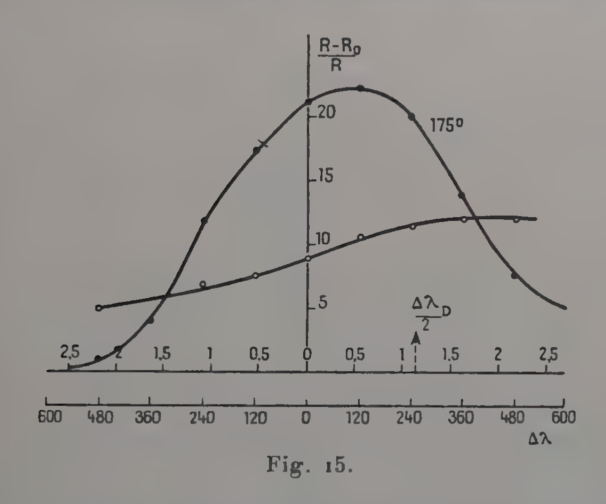


Fig. 15.

analysant la raie λ_{202} émise par le séparateur, au moyen d'une réflexion sélective à 258° C, d'une manière identique au procédé *a*) du chapitre précédent.

Nous avons obtenu la courbe représentative suivante (fig. 15) sur laquelle nous avons reporté le résultat de l'analyse de la même radiation par une cuve à réflexion sélective à 170° C. La fonction $F_{246}(x)$ ne traduit plus qu'une intensité réfléchie lentement variable dans l'étendue du domaine de longueurs d'onde possibles ($- 2$ mA $\leqslant x \leqslant + 2$ mA); ceci caractérise la disparition de la pointe fine de réflexion sélective (α). Le seul phénomène qui subsiste est une variation lente à l'échelle de la largeur Doppler (terme β) qui est mise en évidence par la courbe précédente.

L'étude de ce terme n'exige pas un pouvoir de résolution aussi

élevé que précédemment, de la part de l'appareil dispersif. En particulier l'emploi du filtre magnétique ne s'impose plus, et on gagne beaucoup de lumière en envoyant sur la cuve à réflexion sélective, toute la lumière émise par l'arc à vapeur de mercure. Si celui-ci ne contient qu'une faible pression d'argon ($p \leqslant 6$ mm.), il peut encore être alimenté par un transformateur de 500 watts, sans donner lieu aux phénomènes d'autorenversement (que l'on risque d'observer avec les arcs Otens ordinairement livrés par le fournisseur).

En particulier l'analyse directe du rayonnement de cette lampe, par le procédé qui va être décrit, montre qu'elle émet une raie considérablement renforcée autour des centres hyperfins, ainsi qu'un fond continu moins intense que ces cinq composantes.

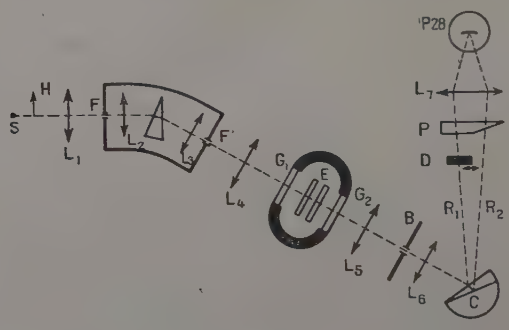


Fig. 16.

Le procédé expérimental est une variante (fig. 16) d'une méthode décrite par Jacquinot et Dufour (18).

La source S peut être plongée dans un champ magnétique H, elle éclaire une lentille L_1 qui donne une image sur la fente d'entrée d'un spectrographe à prisme de Cornu, la fente F' disposée dans le plan focal de ce spectrographe permet de s'en servir comme monochromateur pour la raie 2537. La fente F' est placée au foyer de la lentille L_4 et une lentille L_5 de distance focale 141 cm. donne une image agrandie 10 fois de F' dans le plan de l'écran B. Sur le trajet du faisceau parallèle compris entre L_4 et L_5 est placé un étalon de Pérot et Fabry de 5 mm. d'épaisseur.

Cet étalon est disposé à l'intérieur d'une cuve étanche fermée par deux glaces de quartz G_1 et G_2, et est orienté par autocollimation de manière à ce que son axe optique coïncide exactement avec le centre O d'un cercle de rayon R découpé par l'écran B.

Le faisceau ainsi délimité est envoyé sur la lentille L_6, qui le transforme en faisceau parallèle ; il se réfléchit sur les faces antérieures et postérieures (air-silice et silice-vapeur de mercure) de la cuve C à

réflexion sélective. On obtient deux rayons R_1 et R_2 faisant entre eux un angle voisin de celui des deux faces de la cuve C. Un écran mobile D permet de masquer soit R_1, soit R_2.

Une lame de silice, plan parallèle sur une moitié de sa surface, prismatique sur l'autre, est placée une partie sur R_1, l'autre sur R_2 et les deux faisceaux réfractés sont parallèles entre eux à sa sortie. Ils tombent sur une lentille L_7 qui donne, sur la photocathode du multiplicateur 1P28, une image indépendante du trajet suivi par la lumière.

Le rayon R du trou O est calculé de manière à ne laisser passer que les rayons qui font un angle i avec la normale à E.

Si nous appelons λ la longueur d'onde qui donne un maximum pour $i = 0$:

$$2en = k\lambda \ (k \text{ entier})$$

la radiation $\lambda - \Delta\lambda$ donne un maximum de lumière pour l'angle i :

$$2en\left(1 - \frac{i^2}{2}\right) = k(\lambda - \Delta\lambda)$$

$$\Delta\lambda = \frac{\lambda i^2}{2} .$$

La valeur à adopter pour l'angle i dépend de l'interféromètre lui-même. En effet, si une radiation de longueur d'onde λ donne un maximum d'intensité en O et si la finesse de l'interféromètre est F, cette intensité sera réduite de moitié pour les rayons inclinés de $\frac{1}{\sqrt{kF}}$ sur la normale à l'interféromètre. Une valeur moyenne de i est donc $i = \frac{1}{\sqrt{kF}}$, ce qui, pour une distance focale de 141 cm., donne $R \# 2$ mm.

L'ensemble des radiations de longueur d'onde comprises entre λ et $\lambda\left(1 - \frac{i^2}{2}\right)$ donne donc un maximum de lumière à l'ordre k, qui passe à travers O. Nous avons pris $R = 1$ mm., ce qui, d'une manière certaine, nous permet d'obtenir le pouvoir de résolution vrai de l'interféromètre.

A la sortie du trou O, la lumière s'étend autour de la longueur d'onde $\lambda = \frac{2en}{k}$, sur un intervalle spectral sensiblement égal à la largeur propre de l'interféromètre, k étant l'ordre d'interférence au centre, et n l'indice du gaz qui remplit la cloche.

Réduisons la pression de l'air qui remplit la cuve, en la reliant à une trompe à eau ; l'indice de l'air varie suivant une loi :

$$n = 1 + \alpha p$$

($\alpha \# 3.10^{-4}$ si p est exprimée en atmosphères).

La longueur d'onde isolée par le trou O varie donc, et puisque la largeur spectrale émise par la source ne donne pas lieu à recouvrement d'ordres successifs, on fait défiler en O, avec une intensité proportionnelle à celle avec laquelle elles sont émises, toutes les longueurs d'onde du rayonnement de la source.

Si n_0 est l'indice de l'air sous la pression atmosphérique :

$$\lambda_0 = \frac{2e}{k} n_0$$

est la longueur d'onde de départ, on la retrouve pour toutes les pressions p_j telles que :

$$\lambda_0 = 2e \frac{n_0}{k} = 2e \frac{n_j}{k-j} \qquad (j : \text{entier } 1, 2, 3...)$$

$$n_0 - n_j = j \frac{n_0}{k} \# \frac{j}{k}$$

or :

$$k \# \frac{2e}{\lambda} = \frac{1}{2,5.10^{-5}} = \frac{10^5}{2,5}$$

ce qui donne :

$$n_0 - n_j = 2,5.10^{-5} j$$

$n_0 - n_j$ pouvant varier de $n_0 - 1 = 3 10^{-4}$ à 0, on trouve 12 valeurs possibles de j et on voit donc défiler 12 fois le spectre émis pour S sur 2 537.

Pour l'analyser complètement, il suffit donc de faire varier la pression de $\frac{760}{12} = 63$ mm.

Nous avons opéré pratiquement de la manière suivante :

a) On relie la cloche à la trompe à eau en observant le défilé des anneaux ; on s'arrête de pomper quand l'ordre au centre a diminué d'une certaine quantité supérieure à 1 ; l'interféromètre baigne alors dans l'air à la pression p_0, il sépare une certaine longueur d'onde.

b) On isole la cloche de la trompe à eau et on réalise un nombre suffisant de fois l'opération élémentaire suivante (fig. 17). R_1 étant

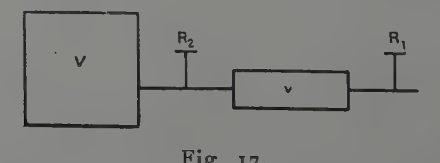


Fig. 17.

fermé, on ouvre R_2, mettant le volume v en communication avec l'air ambiant sous la pression atmosphérique p du moment, on ferme R_2, on ouvre R_1 et on le referme, et ainsi de suite ; on numérote ces opérations successives : 1, 2... m...

Soit p_m la pression à la $m^{\text{ième}}$ opération, nous avons en supposant que l'évolution est isotherme et que l'air est un gaz parfait :

$$\frac{p - p_m}{p - p_0} = \beta^m \qquad (1)$$

où $\beta = \frac{V}{V + v}$ est une constante voisine de 1, caractéristique de l'appareil. Soit maintenant $\lambda_m = \lambda_0 + \delta_m \lambda$ la longueur d'onde transmise à la $m^{\text{ième}}$ opération, si $\Delta\lambda$ est l'interfrange et que l'on observe de nouveau la raie λ_0 lors de l'opération M.

On obtient facilement :

$$\frac{\delta_m \lambda}{\Delta\lambda} = \frac{1 - \beta^m}{1 - \beta^M} \qquad (2)$$

Dans notre montage : $\lambda = 2\,537$; $e = 5$ mm., on a :

$$\Delta\lambda = 64{,}15 \text{ mA} \qquad \text{et} \qquad \beta = 0{,}986.$$

Notre méthode suppose nos opérations isothermes ; pour le vérifier, nous avons analysé le profil spectral émis par la source et déterminé l'écart des composantes hyperfines par la formule (2) ; en faisant une mesure directe sur un cliché photographique, de ces distances, nous obtenons dix équations qui fournissent des valeurs de β concordantes à mieux que 1/200 près.

En étudiant le profil d'absorption d'une cuve à vapeur de mercure, nous avons pu déterminer les écarts vrais des composantes hyperfines de $\lambda = 2\,537$, qui diffèrent sensiblement des valeurs obtenues indirectement par Schuler et Keyston (19). Nous nous sommes de même rendu compte que le déplacement Lorentz de ces centres, dû à la présence d'argon (8 mm.) est en bon accord (0,2 mA) avec les valeurs extrapolées à partir des expériences de Fuchtbauer (20).

Nous avons entrepris l'étude de l'évolution de la réflexion sélective en fonction de la pression de la vapeur de mercure, que nous avons fait varier à partir de 1 cm.

Les expériences étaient conduites de la manière suivante : pour une pression p_m donnée, on place D sur R_2, d'où une mesure proportionnelle à l'intensité émise par la source sur la longueur d'onde λ_m :

$$I_1^m = k_1 I(\lambda_m) d\lambda$$

on masque ensuite R_2 et on obtient :

$$I_2^m = k_2 I(\lambda_m) \rho(\lambda_m) d\lambda.$$

$\rho(\lambda_m)$ étant le facteur de réflexion sélective pour la longueur d'onde λ_m, on en déduit :

$$\frac{I_2^m}{I_1^m} = \frac{k_2}{k_1}\rho(\lambda_m)$$

après avoir pris soin de vérifier, en ramenant D sur R_2, que l'intensité émise par la source pendant la durée des mesures est restée fixe.

Le rapport $\frac{k_2}{k_1}$ s'obtient en laissant la cuve C se refroidir ; à la température ordinaire, son facteur de réflexion est sensiblement celui d'un dioptre silice-vide et se calcule par les formules de Fresnel :

$$\rho_0 = 0,04$$

en effectuant une mesure du type précédent, et connaissant $\rho_0(\lambda_m)$ on en déduira $\frac{k_2}{k_1}$ et ceci nous permet une mesure absolue du facteur de réflexion sélective.

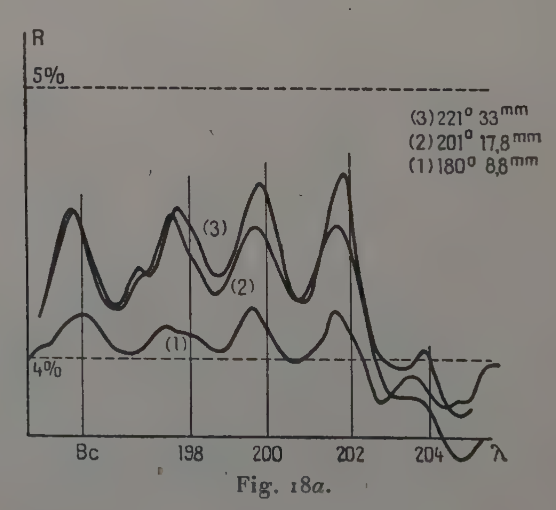


Fig. 18*a*.

Les résultats obtenus sont représentés sur les figures 18.

Elles appellent les remarques suivantes :

1° Le facteur de réflexion ne croît pas d'une manière considérable avec la pression ; à 760 mm, il ne dépasse pas 12 o/o, on est donc encore très loin d'une réflexion métallique.

2° Le facteur de réflexion sur $\lambda = \lambda_{204}$ est inférieur à celui du dioptre silice-vide, la composante de grande longueur d'onde est donc si l'on peut dire « antiréfléchie ».

3° Les composantes de courte longueur d'onde λ_{Bc} et λ_{198} sont beaucoup plus intensément réfléchies que les autres.

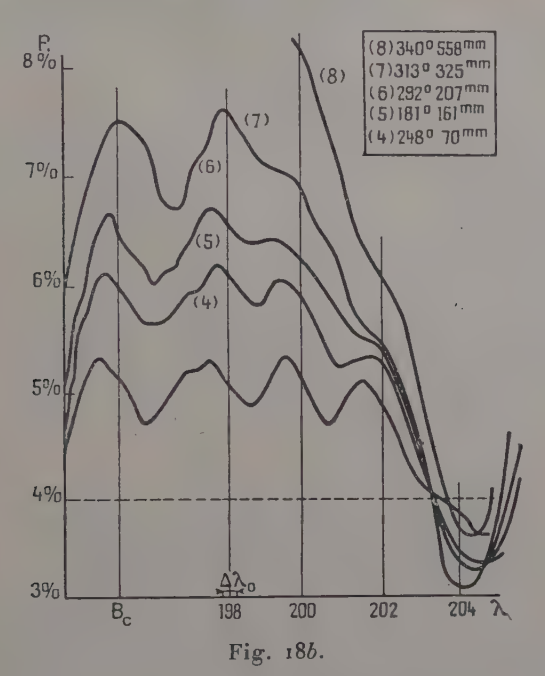


Fig. 18b.

Fig. 18c.

4° En augmentant la pression, on voit successivement disparaître les maximum voisins de λ_{202} puis λ_{200}, sans que préalablement ces maximum se soient déplacés par rapport à la composante hyperfine dont ils sont voisins. On constate d'ailleurs que ces maximum sont sans rapport simple avec les intensités dans la raie de résonance des composantes hyperfines correspondantes.

5° Les maximum relatifs à chaque composante hyperfine restent toujours décalés de quelques mA (2 ou 3) des centres hyperfins sans que cet écart évolue notablement avec la pression.

6° Il apparaît donc que les phénomènes du type de l'interaction atome, photon restent responsables pour une large part du phénomène de réflexion sélective à haute pression.

On voit que le phénomène évolue d'une manière continue ; quand, à une pression donnée, on décrit la structure hyperfine dans le sens des longueurs d'onde croissantes, la réflexion sélective diminue d'une composante hyperfine à sa voisine.

CHAPITRE VI

ÉTUDE THÉORIQUE DU PHÉNOMÈNE

Nous avons voulu comparer les résultats de nos expériences avec ceux que fournissent les théories classiques de la dispersion des vapeurs absorbantes.

Ces théories sont apparemment de deux types, nous verrons qu'ils sont équivalents.

Donnons d'abord les grandes lignes de la théorie la plus simple [Voir par exemple, Born (*Optik*, Springer, 1933, p. 482...)] : on calcule le moment électrique $\overrightarrow{p_0}$ induit par le champ $\overrightarrow{E_0}e^{i\omega t}$ dans un atome fixe par rapport à l'observateur. L'assimilation classique de cet atome à un oscillateur de pulsation propre ω_0 et d'amortissement $2\gamma_0$ conduit à écrire l'équation de déplacement :

$$\overrightarrow{u''} + 2\gamma_0\overrightarrow{u'} + (\gamma_0^2 + \omega_0^2)\overrightarrow{u} = ef\overrightarrow{E_0}e^{i\omega t}$$

f étant la force « quantique » de l'oscillateur ; d'où :

$$\overrightarrow{p_0} = e\overrightarrow{u_0} = \frac{e^2f}{m}\,\frac{1}{\omega^2 + \gamma_0^2 - \omega^2 + 2i\gamma_0\omega_0}\overrightarrow{E_0}e^{i\omega t}$$

$$= \frac{e^2f}{m}\,\frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 + 2i\gamma\omega_0}\overrightarrow{E_0}e^{i\omega t}.$$

On rend compte de l'effet Doppler d'agitation thermique en posant que l'atome envisagé a une probabilité :

$$P(\omega_1) = \frac{1}{\sqrt{\pi}\delta} e^{-\left(\frac{\omega_1 - \omega_0}{\delta}\right)^2} d\omega_1$$

d'avoir la pulsation apparente ω_1 par rapport à l'observateur, ω_0 étant la fréquence non déplacée et δ la largeur Doppler de la raie de résonance correspondante.

On en déduit pour valeur moyenne de p_0 :

$$\overrightarrow{p_0} = \frac{e^2 f}{m} \frac{1}{2\omega_0} \frac{1}{\gamma_0} \left\{ \varphi\left(\frac{\omega - \omega_0}{\gamma_0}, \eta\right) + i\psi\left(\frac{\omega - \omega_0}{\gamma_0}, \eta\right) \right\} \overrightarrow{E_0} e^{i\omega t} = \alpha \overrightarrow{E}$$

avec :

$$\left\{ \begin{array}{l} \eta = \frac{\delta}{2\gamma_0} \\ \varphi\left(\frac{\omega - \omega_0}{\gamma_0}, \eta\right) = \varphi(x, \eta) = \frac{1}{\sqrt{\pi}\eta} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{y e^{-\left(\frac{x-y}{\eta}\right)^2}}{y^2 + 1} dy \\ \psi\left(\frac{\omega - \omega_0}{\gamma_0}, \eta\right) = \psi(x, \eta) = \frac{1}{\sqrt{\pi}\eta} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{e^{-\left(\frac{x-y}{\eta}\right)^2}}{y^2 + 1} dy \end{array} \right.$$

et l'indice complexe $n = \nu - i\varkappa$ de la vapeur, pour une pression correspondant à N atomes par centimètre cube est donné par :

$$n^2 - 1 = 4\pi \times N \times \alpha.$$

En posant :

$$M = \frac{2Nef}{\gamma\nu_0 m},$$

on trouve :

$$\frac{1}{M}(n^2 - 1) = \varphi(x, \eta) + i\psi(x, \eta).$$

Dans ce calcul γ_0 est l'amortissement qu'il convient de donner aux oscillateurs en tenant compte des chocs entre atomes.

Les traités indiquent une méthode de calcul numérique des fonctions φ et ψ, et en donnent des tables de valeurs, pour divers η compris entre 1/10 et 10. Il résulte de l'examen de ces courbes, que dès que $\eta < \frac{1}{2}$, c'est-à-dire $\gamma_0 > \delta$, on ne commet qu'une petite erreur en négligeant l'effet de l'agitation thermique dans le calcul de dispersion.

Mais si nous appliquons les résultats numériques ainsi obtenus dans le domaine de pressions $p < 1$ cm., soit $\eta > 10$, au calcul du facteur de réflexion normale du dioptre silice-vapeur de mercure, nous ne trouvons pas la pointe fine (α) que nous obtenons expéri-

mentalement ; seule se manifeste une évolution lente (β), d'intensité faible dont l'allure est conforme à celle que nous envisagions à la fin de l'étude de la première zone de réflexion sélective.

L'hypothèse A : les atomes de mercure peuvent être considérés comme immobiles dans l'espace, à condition de leur donner une probabilité de fréquence propre conforme à l'effet Doppler, est donc insuffisante pour expliquer notre phénomène.

Nous avons alors cherché à envisager des calculs qui serrent de plus près la réalité ; un grand nombre d'auteurs (Zemansky) se réfèrent à un mémoire de Voigt (21) dont nous allons donner une analyse des calculs.

Les coordonnées d'un atome de mercure de vitesse $\vec{V}(u, v, w)$ sont dans un système d'axes fixes par rapport à l'observateur :

$$\begin{cases} x_a = x_0 + ut \\ y_a = y_0 + vt \\ z_a = z_0 + wt \end{cases}$$

On suppose que le champ électromagnétique est défini par :

$$(1) \qquad \vec{E} \left| \begin{array}{l} \mathrm{E}e^{i\omega\left(t - \frac{nz}{c}\right)} \\ 0 \\ 0 \end{array} \right.$$

et on cherche à déterminer l'indice complexe n en satisfaisant aux équations de Maxwell.

Les équations du mouvement de l'électron dans l'atome sont par rapport aux axes fixes :

$$(2) \quad \left| \begin{array}{l} x'' + 2\gamma(x' - u) + (\gamma^2 + \omega_0^2)(x - x_0 - ut) = ef\mathrm{E}e^{i\omega\left(t - \frac{nz}{c}\right)} \\ y'' + 2\gamma(y' - v) + (\gamma^2 + \omega_0^2)(y - y_0 - vt) = 0 \\ z'' + 2\gamma(z' - w) + (\gamma^2 + \omega_0^2)(z - z_0 - wt) = 0 \end{array} \right.$$

Ce système d'équations devient (3) en rapportant le mouvement de l'électron à des axes XYZ liés à l'atome, soit en faisant le changement de variables et de notations :

$$(3) \quad \left| \begin{array}{l} \mathrm{X} = x - x_0 - ut \\ \mathrm{Y} = y - y_0 - vt \\ \mathrm{Z} = z - z_0 - wt \end{array} \right. \qquad (3') \quad \left| \begin{array}{l} \omega_1 = \omega\left(1 - \frac{nw}{c}\right) \\ \mathrm{F} = \mathrm{E}e^{-i\omega\frac{n}{c}z_0} \end{array} \right.$$

$$(4) \quad \left| \begin{array}{l} \mathrm{X}'' + 2\gamma\mathrm{X}' + (\gamma^2 + \omega_0^2)\mathrm{X} = \frac{ef}{m}\mathrm{E}e^{i\omega\left[t - \frac{n}{c}(z_0 + wt)\right]} = \frac{ef}{m}\mathrm{F}e^{i\omega_1 t} \\ \mathrm{Y}'' + 2\gamma\mathrm{Y}' + (\gamma^2 + \omega_0^2)\mathrm{Y} = 0 \\ \mathrm{Z}'' + 2\gamma\mathrm{Z}' + (\gamma^2 + \omega_0^2)\mathrm{Z} = 0 \end{array} \right.$$

La quantité $\frac{ef}{m}\mathrm{F}e^{i\omega_1 t}$ représente donc le champ « vu » par l'atome au cours de son mouvement, ce champ n'est pas monochromatique, il est exponentiellement croissant ou décroissant suivant le signe de :

$$\frac{\omega \varkappa w}{c} = \varkappa \delta\omega$$

$\varkappa$ étant l'indice d'extinction du milieu et $\delta\omega$ le déplacement Doppler de la fréquence ω, du fait de la vitesse w des atomes dans le sens de propagation de la lumière :

$$\mathrm{F}e^{i\omega_1 t} = \mathrm{F}e^{-\frac{\omega\varkappa w}{c}t}\, e^{i\omega\left(1 - \frac{\nu w}{c}\right)}.$$

L'intégrale générale de (4) est (5) :

$$(5)\quad \left|\begin{array}{l} \mathrm{X} = \frac{ef}{m}\frac{\mathrm{F}e^{i\omega_1 t}}{\gamma^2 + \omega_0^2 - \omega^2 + 2i\gamma\omega_1} + \mathrm{C}_1 e^{(-\gamma + i\omega_0)t} + \mathrm{C}_2 e^{(-\gamma - i\omega_0)t} \\ \mathrm{Y} = \mathrm{C}'_1 e^{(-\gamma + i\omega_0)t} + \mathrm{C}'_2 e^{(-\gamma - i\omega_0)t} \\ \mathrm{Z} = \mathrm{C}''_1 e^{(-\gamma + i\omega_0 t)} + \mathrm{C}''_2 e^{(-\gamma - i\omega_0)t}. \end{array}\right.$$

Les C étant des constantes à déterminer. Il admet alors que l'on peut généraliser une propriété démontrée par H. A. Lorentz (*Amst. Proced.*, 1906, p. 596) ; la valeur moyenne après un choc, du déplacement et de la vitesse de l'électron d'un oscillateur soumis à une excitation sinusoïdale pure, est nulle.

Il en résulte qu'en appelant t_0 l'instant du dernier choc qu'a subi l'atome avant le temps t, et $\mathrm{T} = t - t_0$, on peut déterminer les valeurs de C, et que dans le système, lié à l'atome, il apparaît un courant de composantes :

$$(6)\quad \vec{\mathrm{I}}\ \left|\begin{array}{l} e\frac{d\mathrm{X}}{dt} = \frac{e^2 f}{m}\mathrm{F}e^{i\omega_1 t}\left[\frac{i\omega_1}{\gamma^2 + \omega_0^2 - \omega_1^2 + 2i\gamma\omega_1} + \frac{(-\gamma + i\omega_0)e^{[-\gamma + i(\omega_0 - \omega_1)]\mathrm{T}}}{2i\omega_0[i(\omega_0 - \omega_1) - \gamma]} \right. \\ \qquad\qquad \left. + \frac{(-\gamma - i\omega_0)e^{[-\gamma - i(\omega_0 + \omega_1)]\mathrm{T}}}{2i\omega_0[i(\omega_0 + \omega_1) + \gamma]}\right] \\ e\frac{d\mathrm{Y}}{dt} = 0 = e\frac{d\mathrm{Z}}{dt} \end{array}\right.$$

dans le système fixe, le courant devient $\vec{i}$, que l'on peut écrire, en observant que $\mathrm{F}e^{i\omega_1 t}$ s'écrit aussi $\mathrm{E}e^{i\omega\left(t - \frac{n}{c}z\right)}$ (z, coordonnée du point où l'atome se trouve à l'instant t).

$$(7)\quad \vec{i}\ \left|\begin{array}{l} \frac{e^2 f}{m}\mathrm{E}e^{i\omega\left(t - \frac{nz}{e}\right)}[\ldots] + u \\ v \\ w \end{array}\right.$$

Pour écrire les équations de Maxwell dans le système d'axes fixes, nous aurons à faire intervenir, en un point donné M, la somme $\vec{j}$, de de tous les courants créés à l'instant t, au point M fixe considéré, par tous les atomes qui s'y trouvent.

Cette somme $\vec{j}$ est visiblement :

$$\vec{j} = \mathrm{N}\overline{\vec{i}}.$$

N étant le nombre d'atomes contenus dans l'unité de volume, et $\overline{i}$ la valeur moyenne de i, prise par rapport à T, u, v, w. La moyenne est de la forme :

$$\mathrm{E}e^{i\omega\left(t-\frac{n}{c}z\right)}.\mathrm{A}$$

puisque dans le facteur de A, n'intervient aucune quantité à faire varier dans le calcul, A apparaît donc comme le produit par $i\omega$ de la polarisabilité moyenne du milieu α, $\mathrm{A} = i\omega\alpha$.

Le calcul de la valeur moyenne de A, par rapport à T, présente des difficultés que Voigt n'a pas signalées.

Cette valeur moyenne s'écrit :

$$(8)\quad \left|\begin{aligned} \frac{1}{\frac{e^2 f}{m}}\overline{\mathrm{A}}_{\mathrm{T}} &= \frac{i\omega_1}{\gamma^2 + \omega_0^2 - \omega_1^2 + 2i\gamma\omega_0} \\ &+ \frac{(-\gamma + i\omega_0)}{2\tau i\omega_0[i(\omega_0 - \omega_1) - \gamma]}\int_0^\infty e^{\left[-\gamma-\frac{1}{\tau}+i(\omega_0-\omega_1)\right]\mathrm{T}}d\mathrm{T} \\ &+ \frac{(-\gamma - i\omega_0)}{2\tau i\omega_0[i(\omega_0 + \omega_1) + \gamma]}\int_0^\infty e^{\left[-\gamma-\frac{1}{\tau}-i(\omega_0+\omega_1)\right]\mathrm{T}}d\mathrm{T} \end{aligned}\right.$$

La probabilité d'obtenir T entre T et T $+ d\mathrm{T}$ étant :

$$\frac{1}{\tau}e^{\frac{\mathrm{T}}{\tau}}d\mathrm{T}$$

et τ la durée du libre parcours moyen d'un atome dans la vapeur.

En explicitant ω_1, et en posant $n = \nu - i\varkappa$ (ν = indice de phase et $\varkappa$ indice d'extinction) on obtient comme facteurs de T dans les exponentielles à intégrer de o à $+\infty$:

$$-\gamma - \frac{1}{\tau} + \frac{\omega\varkappa}{c}w + i\left[\omega_0 - \omega\left(1 - \frac{\nu w}{c}\right)\right]$$

et :

$$-\gamma - \frac{1}{\tau} + \frac{\omega\varkappa}{c}w - i\left[\omega_0 + \omega\left(1 - \frac{\nu w}{c}\right)\right]$$

de sorte que les deux intégrales divergent toutes les deux exponentiellement à l'infini pour toutes les valeurs de w telles que :

$$w > \frac{\gamma + \frac{1}{\tau}}{\frac{\omega x}{c}}$$

ou en observant que $\frac{\omega \overline{w}}{c} = \delta$, largeur Doppler de la raie d'émission :

(9) $$w > \frac{\gamma + \frac{1}{\tau}}{\delta x} \overline{w}.$$

Un calcul simple montre que, abstraction faite de cette partie divergente, et $\frac{1}{\tau}$ étant négligeable devant $i\omega\left(1 - \frac{nw}{c}\right)$:

(10) $$A_T = \frac{e^2 f}{m} \cdot \frac{i\omega\left(1 - \frac{nw}{c}\right)}{\left(\gamma + \frac{1}{\tau}\right)^2 + \omega_0^2 - \omega^2\left(1 - \frac{nw}{c}\right)^2 + 2i\left(\gamma + \frac{1}{\tau}\right)\omega\left(1 - \frac{nw}{c}\right)}$$

c'est-à-dire que tout se passe comme si l'atome ne subissait pas de chocs, mais voyait son amortissement passer de leur fait de γ à γ_c :

$$\gamma_c = \gamma + \frac{1}{\tau}.$$

Il faut remarquer qu'admettre que (10) est une expression exacte pour toutes les valeurs de w, revient à éliminer l'effet divergent dû à une proportion d'atomes qui peut être considérable, nous reviendrons sur cette question un peu plus loin.

Admettons avec Voigt que l'expression (10) est correcte, on peut l'écrire :

(11) $$A_T = \frac{e^2 f}{m} \cdot \frac{i\omega\left(1 - \frac{nw}{c}\right)}{\left[\gamma c + i\omega\left(1 - \frac{nw}{c}\right)\right]^2 + \omega_0^2}.$$

Pour trouver α, il reste à prendre la valeur moyenne de (11) par rapport à w, vitesse des atomes dans le sens de propagation de la lumière :

(12) $$\begin{aligned} \alpha &= \frac{e^2 f}{i\omega m} \int_{-\infty}^{+\infty} P(w) \frac{i\omega\left(1 - \frac{nw}{c}\right)}{\left[\gamma_c + i\omega\left(1 - \frac{nw}{c}\right)\right]^2 + \omega_0^2} dw \\ &\# \frac{e^2 f}{m} \int_{-\infty}^{+\infty} P(w) \frac{1}{2i\omega_0 \left\{ \gamma_c + i\left[\omega\left(1 - \frac{nw}{c}\right) - \omega_0\right] \right\}} dw. \end{aligned}$$

$P(w)dw$ étant la probabilité de trouver à l'atome une vitesse suivant oz, comprise entre w et $w + dw$ soit :

$$P(w) = \frac{1}{\overline{w}} \sqrt{\frac{L2}{\pi}}\, e^{-L2\left(\frac{w}{\overline{w}}\right)^2}$$

en appelant $\overline{w}$ la valeur de la vitesse w qui donne un déplacement de fréquence égal à la demi-largeur Doppler.

On obtient ainsi une valeur de α, fonction de n et de $\omega - \omega_0$.

L'équation déterminant n étant :

$$n^2 - 1 = 4\pi N\alpha(\omega - \omega_0, n). \tag{13}$$

Voigt remarque qu'en toute rigueur α dépend de n, mais pose $n = 1$ dans α d'où l'équation du second degré en n :

$$n^2 - 1 = 4\pi N \frac{e^2 f}{2m\omega_0} \int_{-\infty}^{+\infty} P(w) \frac{1}{\left[\omega_0 - \omega\left(1 - \frac{w}{c}\right)\right] + i\gamma_c} dw \tag{14}$$

qui est identique à celle qu'obtient Born. L'ensemble des simplifications faites par Voigt conduit donc au même résultat que l'hypothèse A et n'apporte finalement aucun renseignement supplémentaire quant au mécanisme réel du phénomène.

Nous avons donc essayé de résoudre l'équation (13), en faisant entrer n dans l'expression de α et en prenant un exemple numérique, correspondant à une pression de 6 mm. ($T \# 160°$) ; nous avons constaté que la racine de (13) qui tend vers 1 pour $N \rightarrow 0$, correspond à un indice d'extinction négatif (onde exponentiellement croissante), pour toute la bande de pulsations ω pour laquelle :

$$\gamma_c < (\omega_0 - \omega) < \text{quelques largeurs Doppler}$$

ce résultat absurde n'est pas surprenant, en effet d'après la formule (14) on voit que l'interaction sera maximum pour des valeurs de w positives, et le mouvement des dipôles fixes équivalents sera :

$$p = \alpha \overrightarrow{E} = \frac{e^2 f}{2\omega_0 m} E e^{i\omega\left(t - \frac{nz}{c}\right)} \cdot \frac{1}{\omega_0 - \omega\left(1 - \frac{\nu w}{c}\right) + i\left[\gamma - \frac{\omega\chi w}{c}\right]}$$

ν étant voisin de 1, l'intensité sera maximum pour :

$$\omega_0 = \omega\left(1 - \frac{w}{c}\right) \quad \text{soit} \quad w = \frac{c}{\omega}(\omega_0 - \omega) > 0.$$

La condition de phase requise pour avoir une absorption, exprimant que le mouvement de l'électron absorbe de l'énergie au champ E exige que :

$$\gamma - \frac{\omega \varkappa w}{c} > 0$$

$$\gamma - \varkappa(\omega_0 - \omega) > 0$$

$$\varkappa < \frac{\gamma}{\omega_0 - \omega}.$$

Cette condition est la même que celle (9), qui exprime que l'intégrale (8) a un sens, elle est absurde, pour s'en convaincre il suffit d'imaginer un jet atomique parfait dans lequel les atomes auraient tous la même vitesse, sans se heurter (γ très petit) pour que la lumière se propageant dans le sens du jet et entrant exactement en résonance avec les atomes, ait son absorption limitée à une valeur indépendante de la densité de ce jet atomique.

Cette contraction a son origine dans le processus même de mise en mouvement de l'atome, comme il est décrit par les équations (5), il est la somme d'un terme forcé, $Fe^{i\omega_1 t}$, constamment « accroché » sur l'onde telle qu'elle est au point où se trouve l'atome :

$$Fe^{i\omega_1 t} = Ee^{i\omega\left(t - \frac{n}{c} z\right)}$$

et d'un terme propre :

$$C_1 e^{(-\gamma + i\omega_0) t} + C_2 e^{(-\gamma - i\omega_0) t}$$

le terme forcé est amorti dans le temps comme :

$$e^{-\frac{\omega}{c} \varkappa \omega t}$$

les termes propres le sont comme :

$$e^{-\gamma t}.$$

Pour $t = t_0$, instant du dernier choc, les termes forcés et le terme propre ont un ordre de grandeur commun déterminé par :

$$X(t_0) = X'(t_0) = 0.$$

Mais après cet instant :

a) ou bien : $\gamma > \frac{\omega}{c} \varkappa w$

et les termes propres deviennent plus petits que le terme forcé et ce d'une manière exponentielle ; le terme forcé est prépondérant dans X, et le courant i est du même ordre de grandeur que la dérivée $\frac{dE}{dt}$ du

champ qui règne à l'endroit où il se produit. Les termes propres sont alors des correctifs ; la moyenne des termes forcés permet de définir une polarisabilité ; le courant i est proportionnel à la dérivée du champ E qui le crée à l'instant t ;

b) ou bien : $$\gamma < \frac{\omega}{c} \varkappa w$$

et alors ce sont les termes propres qui deviennent infiniment plus importants que le terme forcé, celui-ci permet encore de définir une polarisabilité, mais le courant correspondant, d'un ordre de grandeur infiniment petit par rapport au reste du courant, dû aux termes propres dont la cohérence avec l'onde est très difficile à déterminer directement.

Le courant i est en réalité une expression compliquée, fonction de E, qui ne permet plus la résolution simple des équations de Maxwell, que l'on obtient quand tous les termes ne dépendent de t et de z que par le facteur :

$$e^{i\omega\left(t-\frac{n}{c}z\right)}$$

qui s'élimine de toutes les équations pour ne laisser subsister qu'une condition déterminant n.

En d'autres termes, ce cas est celui où l'onde s'amortit assez vite pour que les atomes se déplaçant dans le sens du champ transfèrent, par le jeu des vibrations propres, une énergie bien supérieure à celle du champ au point où ils se trouvent, par un procédé qui n'est plus décrit par la notion classique de polarisabilité. Et d'ailleurs on s'aperçoit que dans ce cas la fraction cohérente *fournit* de l'énergie au champ au lieu de lui en *ôter*.

Il semble donc dans le cas qui nous intéresse, qu'il faille abandonner l'idée de décrire le champ électromagnétique par le jeu d'un indice complexe de propagation n.

Toutes ces difficultés étant dues au fait que le champ s'amortit rapidement dans l'espace, nous chercherons à le décrire comme la superposition de champs monochromatiques non amortis :

$$\vec{E} = e^{i\Omega t}\int_{-i\infty}^{+i\infty} F(p)e^{px}dp$$

en appelant désormais Ox la direction normale aux ondes, l'intégrale étant prise suivant l'axe imaginaire du plan représentatif de la variable p, $p = i\pi$.

E se décompose en champs élémentaires :

$$e^{i\Omega\left(t-\frac{\pi}{\Omega}x\right)}$$

π étant positif ou négatif, le champ élémentaire est donc sinusoïdal dans l'espace et se propage soit vers les x positifs, soit vers les x négatifs, sans s'amortir.

Cette intégrale représente en somme une décomposition de Fourier du champ, par rapport à la variable d'espace.

On peut conduire sur chacune de ces composantes des calculs entièrement corrects, l'inconvénient dû à l'indice d'extinction disparaissant complètement.

Soit alors un atome A dont les coordonnées xyz sont à l'instant t :

$$A \left\{ \begin{array}{l} x = x_0 + u(t - t_0) \\ y = y_0 + v(t - t_0) \\ z = z_0 + w(t - t_0) \end{array} \right.$$

(x_0, y_0, z_0) étant le point où l'atome a subi son dernier choc, à l'instant t_0, $t - t_0 = T$, et $V(u, v, w)$ la vitesse de cet atome.

Le champ électrique s'écrit :

$$\vec{E} = \vec{E}_0 \int_{-i\infty}^{+i\infty} e^{i\Omega t} F(p) e^{px} dp \qquad \vec{E}_0 \left| \begin{array}{l} 0 \\ E_0 \\ 0 \end{array} \right.$$

Cherchons le mouvement pris par l'électron de l'atome A sous l'action du champ $F(p)e^{i\Omega t}e^{px}$, non amorti dans l'espace.

Dans le système d'axes lié à l'atome et déduit par translation du système fixe de référence, ce mouvement s'écrit :

$$(1) \qquad \left\{ \begin{array}{l} X = 0 \\ Y = \dfrac{ef}{m} F(p) \dfrac{e^{p(x_0 - ut_0) + (i\Omega + pu)t}}{(i\Omega + pu)^2 + 2\gamma(i\Omega + pu) + \gamma^2 + \omega^2} \\ Z = 0 \end{array} \right.$$

ω étant la fréquence propre, non déplacée par effet Doppler, de l'atome A et γ son amortissement total, somme de l'amortissement naturel et de l'amortissement de choc. Cette formule se justifie complètement à partir du calcul de Voigt parce que le champ « vu » par l'atome est parfaitement sinusoïdal et que la condition (9) n'est plus jamais vérifiée pour aucune valeur de la vitesse w :

$$(2) \qquad \gamma = \gamma_N + \gamma_c.$$

La vitesse de cet électron et par conséquent le courant de Lorentz correspondant a pour coordonnées dans le système d'axes lié à l'atome :

$$(3) \qquad \vec{I}_d \left| \begin{array}{l} 0 \\ \dfrac{e^2 f}{m} F(p)(i\Omega + pu) \dfrac{e^{[p(x_0 - ut_0) + (i\Omega + pu)t]}}{(i\Omega + \gamma + pu)^2 + \omega^2} \\ 0 \end{array} \right.$$

Comme l'a montré Weisskopf (22), les atomes qui interviennent en dispersion ne peuvent pas être différentiés les uns des autres à l'intérieur d'un élément de volume $dxdydz = dv$ voisin du point xyz où l'on cherche le courant de Lorentz, pourvu qu'il y ait statistiquement un nombre suffisant d'atomes dans un élément $dxdydz \ll \lambda^3$; ceci justifie de procéder comme Voigt et de chercher le courant moyen I_d dû à l'atome qui se trouve à l'instant t au point x, y, z, fixe par rapport à l'observateur.

S'il en est ainsi, c'est que pour notre atome A, nous avons :

$$x = x_0 + u(t - t_0)$$

et :

$$(4) \qquad \vec{I}_d = \left| \begin{array}{l} 0 \\ \dfrac{e^2 f}{m} F(p) e^{i\Omega t} \displaystyle\int_{-i\infty}^{+i\infty} \frac{e^{px}(i\Omega + pu)}{(i\Omega + \gamma + pu)^2 + \omega^2} \Pi(u) du \\ 0 \end{array} \right.$$

et en regroupant tous les éléments constitutifs de l'onde $e^{i\Omega t} f(x)$:

$$(5) \qquad \vec{I}_d \left| \begin{array}{l} 0 \\ \dfrac{e^2 f}{m} e^{i\Omega t} \displaystyle\int_{-i\infty}^{+i\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \Pi(u) F(p) \frac{(i\Omega + pu) e^{px}}{(i\Omega + \gamma + pu)^2 + \omega^2} dp du \\ 0 \end{array} \right.$$

$\Pi(u)du$ étant la probabilité qu'a l'atome d'avoir une composante de vitesse suivant Ox, comprise entre u et $u + du$.

Pour pouvoir poursuivre des calculs algébriques, nous prendrons au lieu de la forme réelle de $\Pi(u)$, la forme approchée :

$\Pi(u) = \frac{v}{\pi} \frac{1}{u^2 + v^2}$, v est la valeur de u qui donne la demi-largeur Doppler

dont nous verrons ultérieurement qu'elle est suffisamment proche de la forme de Gauss, dans sa région centrale, à condition de modifier un peu le facteur de normalisation, pour pouvoir représenter avec une bonne approximation notre phénomène.

La première intégrale à calculer est donc :

$$(6) \qquad \frac{v}{\pi} \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{1}{u^2 + v^2} \frac{i\Omega + pu}{(i\Omega + \gamma + pu + i\omega)(i\Omega + \gamma + pu - i\omega)} du = I$$

En posant :

$$\begin{cases} \varepsilon = +1 & \text{si} \quad \mathcal{I}(p) > 0 \\ \varepsilon = -1 & \text{si} \quad \mathcal{I}(p) < 0 \end{cases}$$

on trouve que :

$$I = \frac{i\Omega - i\varepsilon vp}{(i\Omega + \gamma - i\varepsilon vp)^2 + \omega^2}.$$

Et on a pour composante de $\overrightarrow{I}$ suivant oy :

(7) $$I_y = \frac{Ne^2f}{m} e^{i\Omega t} \int_{-i\infty}^{+i\infty} \frac{i\Omega - i\varepsilon vp}{(i\Omega + \gamma - i\varepsilon vp)^2 + \omega^2} F(p) e^{px} dp$$

La fonction sous le signe $\int$ étant continue pour $p = 0$, car alors ε disparaît comme multipliant un terme nul.

Les équations de Maxwell-Lorentz donnent comme condition suivant Oy :

(8) $$c^2 \frac{\partial^2 E}{\partial x^2} = \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} + 4\pi \frac{\partial I}{\partial t}.$$

Nous sommes donc amenés à dériver deux fois par rapport à x :

$$\int_{-i\infty}^{+i\infty} F(p) e^{px} dp.$$

Si β est la partie principale en $\frac{1}{p}$ de $F(p)$ quand $p \to \infty$, et α celle de $pF(p) - \beta$, on a :

$$\frac{\partial^2 f}{\partial x^2} = \int_{-i\infty}^{+i\infty} [p^2F(p) - \alpha - \beta p] e^{px} dp$$

$$\frac{\partial f}{\partial x} = \int_{-i\infty}^{+i\infty} [pF(p) - \beta] e^{px} dp.$$

(8) détermine donc (9) qui fournit $F(p)$:

(9) $$c^2[p^2F(p) - \alpha - \beta p] = -\Omega^2 F(p) + \frac{4\pi Ne^2 f}{m} i\Omega \frac{i\Omega - i\varepsilon vp}{(i\Omega + \gamma - i\varepsilon vp)^2 + \omega^2} F(p)$$

d'où l'on tire (10) :

(10) $$F(p) = \frac{c^2(\alpha + \beta p)[(i\Omega + \gamma - i\varepsilon vp)^2 + \omega^2]}{(c^2p^2 + \Omega^2)[(i\Omega + \gamma - i\varepsilon vp)^2 + \omega^2] - \frac{4\pi Ne^2 f}{m} i\Omega(i - i\Omega\varepsilon vp)}$$

On vérifie aisément que l'on a bien :

$$F(p) \dot{\sim} \frac{\beta}{p}$$

et : $$pF(p) - \beta \dot{\sim} \frac{\alpha}{p}$$

l'intégrale $\int e^{i\Omega t} F(p) e^{px} dp$ définit le champ électrique E de l'onde électromagnétique quel que soit x. Pour calculer le facteur de réflexion du dioptre silice-vapeur de mercure, nous supposerons que tout

l'espace $x < 0$ est rempli par la silice et qu'il s'y propage une onde incidente où E et H sont dirigés suivant Oy et Oz, et une onde réfléchie où E et H sont dirigés suivant Oy et — Oz, l'onde dans la vapeur étant décrite par (10), les conditions de passage entre les valeurs que prennent E et H pour $x = 0$ et qui doivent être égales dans la silice et la vapeur nous détermineront l'onde transmise et l'onde réfléchie.

Il faut pour cela que l'intégrale (10) définisse une solution des équations de Maxwell pour un demi-espace $x > 0$, rempli de vapeur de mercure, c'est-à-dire que puisque E et H sont toujours supposés égaux aux valeurs déduites de (10), que le courant i qui en résulte compte tenu des rebondissements sur la paroi $x = 0$, ait la même valeur que celui qui nous a permis de calculer (10).

Ce courant i est lié au mouvement de l'électron optique de l'atome de mercure sous l'action du champ électromagnétique E, H. Pour un atome dont la vitesse v est négative, c'est-à-dire qui va vers le dioptre, rien n'est changé dans le calcul de ce mouvement ; il n'en est pas de même pour un atome qui s'éloigne du dioptre sauf si ($v > 0$) il n'a pas rebondi sur le dioptre depuis l'instant t_0 de son dernier choc.

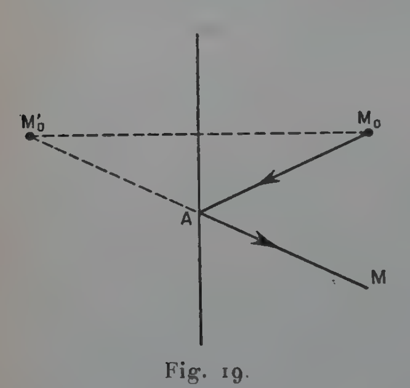


Fig. 19.

Si au contraire, à l'instant de ce dernier choc, il avait une vitesse $-v$ et a ensuite rebondi pour se trouver en M(x, y, z) à l'instant t, le mouvement de l'électron risque de ne plus correspondre à celui qui est décrit par (10).

Pour assurer cette correspondance, il faut que l'on puisse associer à l'atome qui a effectué le trajet M_0AM, un atome qui, dans le cas où la vapeur remplit tout l'espace passerait en M avec la même vitesse et le même mouvement. Il est clair qu'un tel atome qui suivrait le trajet M'_0AM (M'_0 symétrique de M_0 par rapport au dioptre) donnera le même mouvement en M que l'atome réel si $E(x) = E(-x)$, les champs « vus » par l'atome qui a rebondi et l'atome fictif équivalent étant les mêmes. Ceci suppose que le rebondissement sur le dioptre ne perturbe pas en moyenne le mouvement de l'électron parallèlement au dioptre, soit que ce dioptre ne confère pas en moyenne d'impulsion parallèlement à lui-même à l'électron, c'est-à-dire que le plan $x = 0$ est assez parfait à l'échelle de la longueur d'onde pour que le champ qu'il crée à son voisinage et qui provoque le rebondissement soit en moyenne normal au dioptre (dioptre réfléchissant et non diffusant). Nous ne retiendrons donc pour la suite que les fonctions (10) qui don-

nent un champ électrique pair. On voit facilement que cela revient à faire $\beta = 0$.

Nous devons donc prendre pour expression définitive de $F(p)$:

$$(11) \qquad F(p) = \frac{c^2\alpha[(i\Omega + \gamma - i\varepsilon vp)^2 + \omega^2]}{(c^2p^2 + \Omega^2)[(i\Omega + \gamma - i\varepsilon vp)^2 + \omega^2] - \frac{4\pi Ne^2 f}{m} i\Omega(i\Omega - i\varepsilon vp)}.$$

La fonction $f(x) = \int_{-i\infty}^{+i\infty} F(p)e^{px}dp$, nous intéresse donc essentiellement par ses valeurs $f(0)$ et $f'(0)$, or l'infini $F(p) \dot{\sim} \frac{\alpha}{p^2}$ et par conséquent, si $f(x)$ est définie pour tout x, et donc si $f(0)$ peut s'obtenir sans précautions spéciales, $f'(x)$ n'est définie et continue que pour $x \neq 0$ par :

$$f'(x) = \int_{-i\infty}^{+i\infty} pF(p)e^{px}dp$$

et sa valeur pour $x = 0$ ne peut pas s'obtenir par :

$$f'(0) = \int_{-i\infty}^{+i\infty} pF(p)dp$$

qui diverge ; ceci est dû à la discontinuité de $f'(x)$ au point $x = 0$. Cette fonction étant impaire, donne lieu à deux valeurs distinctes :

$$f'(+0) \quad \text{et} \quad f'(-0) \text{ opposées.}$$

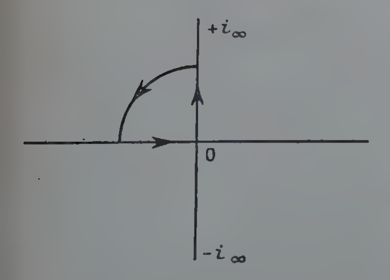
Pour pouvoir calculer $f'(+0)$ par exemple, nous sommes amenés à transformer l'intégration, ce qui permettra du même coup de donner une interprétation simple du phénomène qui a eu lieu dans la vapeur.

Soient :

$$F_+(p)e^{px} = F(p, \varepsilon = 1)e^{px}$$
$$F_-(p)e^{px} = F(p, \varepsilon = -1)e^{px};$$

nous avons visiblement :

$$f(x) = \int_{-i\infty}^{+i\infty} F(p)e^{px} = \int_0^{i\infty} F_+e^{px}dp + \int_{-i\infty}^0 F_-e^{px}dp.$$



Supposons $x > 0$ dans tout ce qui suit ; sur la portion du cercle de centre O et de rayon R infiniment grand, compris dans le quadrant supérieur gauche du plan des p,

Fig. 20.

$| e^{px} | = e^{+R(p)x}$ et l'intégrale $\int F_+ e^{px} dp$ est nulle sur ce contour.

On a donc :

$$\int_0^{+i} F_+ e^{px}\, dp = 2\pi i \Sigma R_+ - \int_{-\infty}^{0} F_+ e^{px} x dp$$

ΣR_+ étant la somme de tous les résidus de $F_+(p)e^{px}$, correspondants à des pôles du quadrant supérieur gauche.

On démontre de même que :

$$\int_{-i\infty}^{0} F_-(p) e^{px} dp = 2\pi i \Sigma R_- - \int_0^{-\infty} F_-(p) e^{px} dp.$$

ΣR_- étant la somme des résidus de $F_-(p)e^{px}$ dont les pôles sont dans le quadrant inférieur gauche ; on aboutit à (12) :

$$(12) \quad f(x) = \overbrace{2\pi i(\Sigma R_+(x) + \Sigma R_-(x))}^{\alpha\varphi(x)} + \overbrace{\int_0^{-\infty} [F_+(p) - F_-(p)] e^{px} dp}^{\alpha\psi(x)}$$

et nous verrons que sous cette forme, l'opération de dérivation ne présente plus de difficulté pour $x \to +0$.

Posant $F^{\pm}(p) = G_{\pm}(p)e^{px}$, nous avons en premier lieu à étudier les pôles de $G_{\pm}(p)$; on a d'ailleurs :

$$G_+(p) = G_-(-p)$$

de sorte qu'il suffit d'étudier les quatre racines p_1, p_2, p_3, p_4, de l'équation :

$$(13) \qquad (c^2p^2 + \Omega^2)[(i\Omega + \gamma - ivp)^2 + \omega^2] - \frac{4\pi N e^2 f}{m} i\Omega(i\Omega - ivp) = 0$$

dont nous allons chercher des développements en fonction de N, soit de la pression de la vapeur de mercure.

Posons :

$$(14) \quad \begin{cases} p = \dfrac{i\Omega}{c} n & (n \text{ étant donc l'analogue d'un indice}) \\ \dfrac{\Omega v}{c} = \delta & (\delta \text{ étant la demi-largeur Doppler de la raie de résonance}) \end{cases}$$

il vient :

$$(15) \qquad (n^2 - 1)[(i\Omega + \gamma + \delta n)^2 + \omega^2] = \frac{4\pi N e^2 f}{\Omega m}(\Omega - i\delta n)$$

pour $N = 0$, les quatre racines sont :

$$\begin{cases} n_1^0 = 1 \\ n_2^0 = -1 \\ n_3^0 = -\dfrac{\gamma + i(\Omega - \omega)}{\delta} = -\Gamma + i\Delta\Omega \\ n_4^0 = -\dfrac{\gamma + i(\Omega + \omega)}{\delta} = -\Gamma - i\Sigma\Omega. \end{cases}$$

En posant :

(16)
$$\left|\begin{aligned} \Gamma &= \frac{\gamma}{\delta} \\ \Delta\Omega &= \frac{\omega - \Omega}{\delta} \\ \Sigma\Omega &= \frac{\omega + \Omega}{\delta} \end{aligned}\right.$$

ce qui revient à prendre, comme unité de fréquence, la demi-largeur Doppler.

Posons $n_1 = 1 + \varepsilon_1 N$, on obtient, en posant $K = \frac{\pi e^2 f}{\Omega m \delta} N$:

$$\boxed{n_1 = 1 + K \frac{1}{\Delta\Omega + i(\Gamma + 1)}}$$

de même :

$$\boxed{n_2 = -1 - K \frac{1}{\Delta\Omega + i(\Gamma - 1)}}$$

$$\boxed{n_3 = -\Gamma + i\Delta\Omega + 2K \frac{i}{[\Delta\Omega + i(\Gamma + 1)][\Delta\Omega + i(\Gamma - 1)]}}$$

$$\boxed{n_4 = -\Gamma - i\Sigma\Omega + 2K \frac{i}{[\Sigma\Omega - i(\Gamma + 1)][\Sigma\Omega - i(\Gamma - 1)]}}$$

Il reste à voir lesquels de ces pôles entrent effectivement en jeu dans le calcul des résidus que nous avons envisagé plus haut, soit à les placer dans les divers quadrants du plan des n, ou mieux des p.

Un examen rapide montre que $\Sigma R_+ = 0$ et que, dans ΣR_-, intervient toujours, et seulement, le résidu de $F_-(p)e^{px}$, relatif au pôle $-p_1$.

Calcul de ce résidu. — C'est $R_-(-p_1)$, résidu de :

$$F_-(p) = \frac{c^2\alpha[(i\Omega + \gamma + ivp)^2 + \omega^2]e^{px}}{(c^2p^2 + \Omega^2)[(i\Omega + \gamma + ivp)^2 + \omega^2] - \frac{4\pi N e^2 f}{m}(i\Omega + ivp)(i\Omega)}$$

pour $p = -p_1$, zéro du dénominateur.

Un calcul de développement fournit sa valeur, on trouve :

$$R_- = -\frac{\alpha c}{2i\Omega}\left[1 - K\left\{\frac{1}{\Delta\Omega + i(\Gamma + 1)} + \frac{i}{[\Delta\Omega + i(\Gamma + 1)]^2}\right\}\right]e^{-p_1 x}$$

et on a au premier ordre près également :

$$\frac{dR_-}{dx} = \frac{\alpha}{2}\left[1 - K\frac{i}{[\Delta\Omega + i(\Gamma + 1)]^2}\right]e^{-p_1 x}.$$

Nous trouvons donc, dans le champ total, une onde :

$$e^{i\Omega t}\alpha\varphi(x) = \alpha . 2\pi i R_- e^{i\Omega t}.$$

Soit :

$$\alpha\varphi = -\pi\alpha\frac{c}{\Omega}[1 - K\ldots]e^{i\Omega\left[t - \frac{n_1}{c}x\right]}.$$

C'est une onde sinusoïdale exponentiellement amortie, identique à celle que l'on trouve par les méthodes de calcul antérieures (Born, Voigt). Il reste dans le champ un terme supplémentaire :

$$\alpha\psi e^{i\Omega t} = e^{i\Omega t}\int_0^{-\infty}[F_+(p) - F_-(p)]e^{px}dp$$

qui s'ajoute à $\alpha\varphi e^{i\Omega t}$.

En explicitant les deux dénominateurs par rapport à leurs pôles $\pm p_1, \pm p_2, \pm p_3, \pm p_4$ que nous venons de calculer, on trouve :

$$F_+ - F_- = 8K\alpha\frac{\delta\Omega^2}{c^2 v^3}\frac{p[\gamma^2 + \Omega^2 + \omega^2 - v^2 p^2]}{(p^2 - p_1^2)(p^2 - p_2^2)(p^2 - p_3^2)(p^2 - p_4^2)}e^{px} = H(p)e^{px}$$

et le terme $\alpha\psi$ apparaît donc comme une correction d'ordre K au terme $\alpha\varphi$ que l'on suppose usuellement représenter le champ dans la vapeur.

On observe que $\alpha\psi(x) = \int_0^{-\infty}H(p)e^{px}dx$, est différentiable sans précautions par rapport à x, car $H(p)$ est de l'ordre de $\frac{1}{p^5}$, à l'infini.

Donc :

$$\begin{cases} \psi(0) = \int_0^{-\infty}H(p)dp \\ \psi'(0) = \int_0^{-\infty}pH(p)dp \end{cases}$$

Le calcul de ces deux valeurs exige la décomposition de H en éléments simples ; mais pour avoir les termes d'ordre K, il suffit de prendre $p_1 = p_1^0$, $p_2 = p_2^0 \ldots$ car les termes ultérieurs des développements de ces pôles donnent des termes du second ordre en K dans $\alpha\psi$.

Un calcul long mais sans difficulté fournit ces développements :

$$\psi(0) = 2R\frac{\alpha c}{\omega}\frac{1}{\Delta\Omega + i(\Gamma - 1)}\cdot\frac{1}{\Delta\Omega + i(\Gamma + 1)} + 4K\frac{\alpha c}{\omega}\frac{\text{Log}(\Gamma - i\Delta\Omega)}{[\Delta\Omega + i(\Gamma + 1)]^2[\Delta\Omega + i(\Gamma + 1)]^2}$$

et :

$$\Psi'(0) = -\frac{\pi K\alpha}{[\Delta\Omega + i(\Gamma + 1)]^2}.$$

En conclusion, nous avons $f(0)$ et $f'(0)$ en regroupant tous les termes partiels :

$$\left\{\begin{array}{l} f(0) = 2\pi i\left(-\frac{\alpha c}{2i\Omega}\right)\left[1 - K\left\{\frac{1}{\Delta\Omega + i(\Gamma+1)} + \frac{i}{[\Delta\Omega + i(\Gamma+1)]^2}\right\}\right] + \dots \\ \dots + 2K\alpha\frac{c}{\Omega}\frac{1}{[\Delta\Omega + i(\Gamma-1)][\Delta\Omega + i(\Gamma+1)]} + 4K\alpha\frac{c}{\omega}\frac{\mathrm{Log}(\Gamma - i\Delta\Omega)}{[\Delta\Omega + i(\Gamma-1)]^2[\Delta\Omega + i(\Gamma+1)]^2} \\ f'(0) = \pi i\alpha\left[1 - \frac{Ki}{[\Delta\Omega + i(\Gamma+1)^2]}\right] - \frac{\pi K\alpha}{[\Delta\Omega + i(\Gamma+1)]^2} = \pi i\alpha \end{array}\right.$$

Calcul du facteur de réflexion. — Nous avons, dans la vapeur de mercure, le champ électrique $\vec{E}$:

$$\vec{E} \left|\begin{array}{l} 0 \\ e^{i\Omega t} f(x) \\ 0 \end{array}\right.$$

or :

$$\frac{1}{c}\frac{\partial \vec{H}}{\partial t} = -\overrightarrow{rot}\,E \left|\begin{array}{l} 0 \\ 0 \\ -e^{i\Omega t} f'(x) \end{array}\right.$$

d'où :

$$\vec{H} \left|\begin{array}{l} 0 \\ 0 \\ -\frac{c}{i\Omega} e^{i\Omega t} f'(x) \end{array}\right.$$

Si les ondes incidente et réfléchie sont dans la silice :

$$\vec{E}_i \left|\begin{array}{l} 0 \\ A e^{i\Omega\left(t - \frac{n}{c}x\right)} \\ 0 \end{array}\right. \qquad \vec{H}_i \left|\begin{array}{l} 0 \\ 0 \\ nA e^{i\Omega\left(t - \frac{n}{c}x\right)} \end{array}\right.$$

$$\vec{E}_r \left|\begin{array}{l} 0 \\ R e^{i\Omega\left(t + \frac{n}{c}x\right)} \\ 0 \end{array}\right. \qquad \vec{H} \left|\begin{array}{l} 0 \\ 0 \\ -nR e^{i\Omega\left(t + \frac{n}{c}x\right)} \end{array}\right.$$

Les équations de passage donnent :

$$\left\{\begin{array}{l} A + R = f(0) \\ nA - nR = -\frac{c}{i\Omega} f'(0) \end{array}\right.$$

D'où l'on tire :

$$\frac{A - R}{A + R} = \frac{M}{n} \qquad \text{avec :} \qquad M = \frac{ic}{\Omega}\frac{f'(0)}{f(0)}$$

on aura :

$$\frac{R}{A} = \frac{1 - M/n}{1 + M/n} \qquad \text{et :} \qquad \mathcal{R} = \left| \frac{R^2}{A^2} \right| = \left| \frac{1 - M/n}{1 + M/n} \right|^2$$

M est donc le nombre qui joue le rôle d'indice pour la vapeur de mercure dans le calcul de l'onde réfléchie et de l'onde transmise $\left(\text{calcul de} \left|\frac{\alpha}{A}\right|^2\right)$, cette quantité vaut après des réductions simples :

$$M = 1 + K\left[\frac{1}{\Delta\Omega + i(\Gamma + 1)} + \frac{i}{[\Delta\Omega + i(\Gamma + 1)]^2} + \frac{2}{\pi} \frac{1}{[\Delta\Omega + i(\Gamma + 1)][\Delta\Omega + i(\Gamma - 1)]} + \frac{4/\pi \operatorname{Log}(\Gamma - i\Delta\Omega)}{[\Delta\Omega + i(\Gamma + 1)]^2[\Delta\Omega + i(\Gamma - 1)]^2}\right]$$

Calcul des paramètres. — 1° N EN FONCTION DE LA TEMPÉRATURE ET DE LA PRESSION. — Suivant que N désigne le nombre total d'atomes, ou le nombre d'atomes Hg_{202}, renfermés dans 1 cm³ de vapeur, nous avons :

$$N = 6{,}02 \,.\, 10^{23} \frac{p\text{ mm.}}{760} \frac{1}{22\,400} \frac{273}{T}$$

$$N_{202} = 0{,}29 N$$

$$N = 9{,}65 \,.\, 10^{18} \frac{p\text{ mm.}}{T}$$

$$N_{202} = 2{,}89 \,.\, 10^{18} \frac{p\text{ mm.}}{T}$$

2° CALCUL DE $\frac{\pi e^2 f}{m\omega\delta} = A$ ($K = AN$). — Nous prendrons :

$$\left\{\begin{array}{l} e = 4{,}8 \,.\, 10^{10} \\ f = 0{,}026 \\ m = 9{,}1 \,.\, 10^{-28} \\ \Omega = 2\pi\nu = 2\pi \times 1{,}18 \,.\, 10^{15} = 7{,}41 \,.\, 10^{15} \\ \delta = \frac{1}{2}\Delta\Omega_D = \pi \,.\, 10^9 \end{array}\right.$$

D'où :

$$A = 8{,}88 \,.\, 10^{-19}.$$

3° CALCUL DE Γ. — On a :

$$\Gamma = \frac{\gamma_N + \gamma_c}{\delta}$$

ou :

$\gamma_c = \frac{1}{\tau_0}$ (τ_0 : durée du libre parcours moyen)

$\gamma_n = \frac{1}{2\tau}$ (τ : durée de vie moyenne d'un atome excité).

Weisskopf (23) a calculé $\frac{1}{\tau_0}$ et il vient dans notre cas :

$$\Gamma = \frac{A}{\sqrt{2}} N = 6{,}28 . 10^{-19} N.$$

Ceci permet de déterminer les valeurs de N, donc de T qui donnent $\Gamma = 0{,}1$ et $\Gamma = 0{,}025$, pour lesquelles nous avons fait les calculs numériques. Ce sont :

Pour $\Gamma = 0{,}1$: $N = \frac{10^{18}}{6.28} = 15{,}75 . 10^{16}$; $T = 174°$ C
Pour $\Gamma = 0{,}025$: $N = 3{,}94 . 10^{16}$; $T = 138°$ C,

ce qui correspond respectivement à des pressions de 7,1 mm. et 1,7 mm.

4° Calcul du coefficient K de dispersion. — Nous avons pris la probabilité de trouver la vitesse d'un atome suivant Ox comprise entre u et $u + du$ égale à :

$$\frac{v}{\pi} \cdot \frac{1}{u^2 + v^2} du.$$

Pour $u = v$ ce facteur est réduit à la moitié de la valeur qu'il a pour $u = 0$, et la demi-largeur Doppler est :

$$\delta = \frac{\omega v}{c}.$$

En réalité ce facteur de probabilité s'écrit :

$$\frac{1}{v} \cdot \sqrt{\frac{L2}{\pi}} . e^{-L2\left(\frac{u}{v}\right)^2} du.$$

Le profil exact (B) donne beaucoup plus d'atomes centraux que celui que nous avons pris (A). Comme nous cherchons à expliquer un phénomène fin, nous voyons que nous ne ferons qu'ajouter des atomes de grande vitesse, donnant un élargissement grand, en prenant le profil (C) déduit du profil (A) en multipliant la probabilité A par :

$$\frac{\frac{1}{v}\sqrt{\frac{L2}{\pi}}}{\frac{1}{\pi v}} = \sqrt{\pi L2} = 1{,}475,$$

le profil (C) épouse alors très sensiblement le profil (B) dans la région centrale, et jusqu'à $|u| \# 2v$.

Cette opération revient à prendre :

$$K = 1{,}475 . AN_{202} = 0{,}29 \times 1{,}475 \times AN$$

sans modifier Γ.

On a donc pour la composante Hg_{202} :

$$K_{202} = 0{,}0626\Gamma.$$

Calcul du facteur de réflexion. — Nous avons $M = 1 + rK$, r ne dépendant que de Γ; nous avons calculé r pour deux valeurs de Γ (0,1 et 0,025) et construit les courbes représentatives de la quantité complexe rK en fonction de $\Delta\Omega$. On s'aperçoit alors que la quantité $(M - 1)$ correspondant à ces deux valeurs de Γ est petite devant 1, ce qui justifie un développement du premier ordre en K, pour le facteur de réflexion du dioptre silice-vapeur de mercure. On a :

$$R = \left| \frac{1{,}5 - M}{1{,}5 + M} \right|^2$$

ou en posant $rK = (s + i\sigma)K$, en séparant les parties réelles et imaginaires de r et en se bornant au premier ordre $R = 0{,}053\,(1 - 4{,}1Ks)$ qui ne dépend que de la partie réelle s de r. La partie imaginaire n'intervient que si $\sigma \to 1$, c'est-à-dire pour des valeurs de Γ de l'ordre de 1.

Les deux courbes donnant les variations de R en fonction de $\Delta\Omega$ pour $T = 175^\circ$ et $T = 138^\circ$, sont données plus loin en figure 22.

Conclusions générales.

Dans la région de pressions que nous avons appelée « première zone de réflexion sélective », l'évolution de la réflexion sélective est donc déterminée par la partie réelle de $(M - 1)$. On peut décomposer le facteur de K, r, en trois parties additives :

a) Un terme : $\frac{1}{\Delta\Omega + i(\Gamma + 1)}$ dont la partie réelle vaut sensiblement $\frac{\Delta\Omega}{\Delta\Omega^2 + 1}$.

On trouve ce terme et ce terme seulement, quand on traite le problème suivant les hypothèses de Born.

Remarquons également que si $\delta \to 0$, c'est-à-dire pour des atomes fixes, la quantité :

$$K . \frac{1}{\Delta\Omega + i(\Gamma + 1)} \to \frac{\pi N e^2 f}{m\omega} \frac{1}{\omega - \Omega + i\gamma}$$

qui redonne la formule de dispersion classique, pour des atomes immobiles.

Ce terme a une partie réelle qui évolue à l'échelle de la largeur Doppler (courbe 21_1).

b) Un terme $\frac{i}{[\Delta\Omega + i(\Gamma + 1)]^2} + \frac{2}{\pi} \frac{1}{[\Delta\Omega - 1i(\Gamma + 1)][\Delta\Omega + i(\Gamma - 1)]}$ dont le produit par K tend vers 0 avec δ, et ne contribue pas à la dispersion

des atomes immobiles. Ce terme ne figure pas dans les résultats des calculs de Born.

Sa partie réelle vaut sensiblement :

$$\frac{2\Delta\Omega}{(\Delta\Omega^2+1)^2}+\frac{2}{\pi}\frac{1}{\Delta\Omega^2+1}$$

c'est un terme du même ordre de grandeur que le précédent, et qui évolue aussi à l'échelle de la largeur Doppler (courbe 21_{II}).

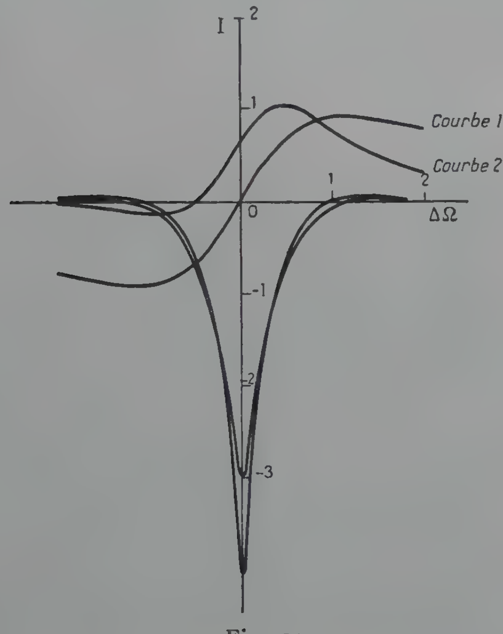


Fig. 21.

c) Un terme $\frac{4}{\pi}\frac{\text{Log}\,[\Gamma-i\Delta\Omega]}{[\Delta\Omega+i(\Gamma+1)]^2[\Delta\Omega+i(\Gamma-1)]^2}$ dont le produit par K tend vers o avec δ et dont la partie réelle évolue sensiblement comme :

$$\frac{2}{\pi}\frac{\text{Log}\,(\Gamma^2+\Delta\Omega^2)}{[\Delta\Omega^2+1]^2}.$$

Le numérateur évolue à l'échelle de la largeur de choc Γ, et par conséquent ce terme est responsable de la pointe de réflexion sélective.

La courbe des variations de ce terme est représentée sur la figure. On constate alors qu'il ne joue que dans une région très centrale.

Nous avons représenté en pointillé sur la figure 22 la courbe du facteur de réflexion obtenue pour $\Gamma = 0{,}1$, à partir du 1er terme seul de notre développement et que donnent les hypothèses que nous avons rappelées au début de ce chapitre ; et en trait plein les courbes correspondant aux trois termes pour $\Gamma = 0{,}1$ et $\Gamma = 0{,}025$.

Ces courbes se comparent à celles obtenues expérimentalement, ce qui montre le bon accord entre l'expérience et la théorie.

Le calcul *a priori* de la largeur de la pointe de réflexion sélective est malaisé car il est difficile de calculer, sur la somme des trois termes, les valeurs de $\Delta\Omega$ pour lesquelles la pointe de réflexion se détache de la courbe à évolution lente due aux termes *a*) et *b*).

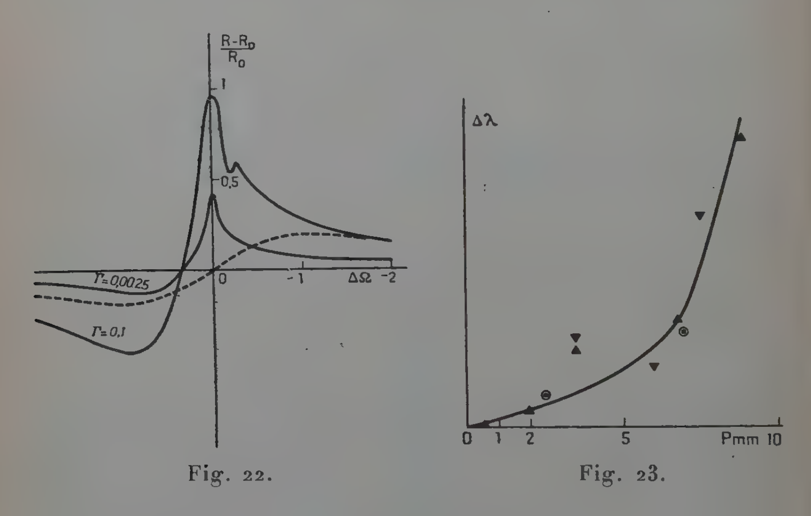


Fig. 22. Fig. 23.

Nous avons seulement reporté sur la courbe expérimentale (en ⊙), les deux largeurs théoriques à 138° et 170°, qui sont en bon accord avec elle (fig. 23).

L'écart entre la réflexion sélective et la réflexion silice-vide varie proportionnellement à r. La contribution de la pointe peut s'évaluer en prenant la valeur de r pour $\Delta\Omega = 0$ et celle du maximum dû au phénomène large en prenant sa valeur α pour $\Delta\Omega = -1$, on trouve :

$$r(0) = \frac{2}{\pi}(1 + 2 \operatorname{Log} \Gamma) \quad \text{et} \quad \alpha(-1) = \frac{1}{\pi}(1 - \pi).$$

La pointe sera inobservable pratiquement quand :

$$|r(0)| < |\alpha(-1)|$$

soit :

$$|\operatorname{Log} \Gamma| < \frac{\pi + 1}{4} \# 1 \qquad \text{d'où} \qquad \Gamma = \frac{1}{e} = 0{,}37.$$

C'est donc aux environs de $p = 20$ mm. ($\Gamma = 0,37$), soit $t = 205^\circ$, que la réflexion sélective doit s'étouffer (nous l'avions constaté expérimentalement).

Pour des pressions inférieures $\Gamma \ll 0,37$, on a $r(0) \gg \alpha(-1)$, donc le contraste augmente et la réflexion sélective a une contribution plus importante dans le phénomène total.

On pourrait croire que l'optimum est obtenu pour des pressions telles que :

$$\Gamma = \frac{\gamma_N}{\delta} \# 10^{-3} \qquad \text{soit} \qquad \text{Log}\,\Gamma \# -7$$

auquel cas :

$$\begin{cases} r(0) \# \dfrac{30}{\pi} \\ \alpha(-1) \# \dfrac{4}{\pi} \end{cases}$$

mais l'intensité du phénomène est alors nulle, car elle est proportionnelle à K, soit à la pression.

On voit donc qu'il doit exister une pression optimum qui rende compatible, avec l'intensité de la réflexion sélective, un bon contraste entre la pointe fine et le phénomène large.

C'est cette pression qui correspond expérimentalement à la température de 140°, dont nous nous sommes servis dans l'autoanalyse du phénomène.

Etude sommaire de l'onde dans la vapeur de mercure. — Nous pouvons décrire cette onde par son champ électrique E :

$$\begin{cases} E = -\dfrac{\pi\alpha c}{\Omega}[\varphi(x) + \psi(x)]e^{i\Omega t} \\ \text{avec :} \\ \varphi(x) = \left\{ 1 - K\left[\dfrac{1}{\Delta\Omega + i(\Gamma + 1)} + \dfrac{i}{(\Delta\Omega + i(\Gamma + 1))^2}\right]\right\} e^{-i\Omega \frac{n_1}{c} x} \\ \psi(x) = \dfrac{8}{\pi} K \dfrac{\delta\Omega^3}{c^3 v^3} \displaystyle\int_0^{-\infty} h(p) e^{px} dp \end{cases}$$

avec :

$$h(p) = \frac{p[\gamma^2 + \omega^2 + \Omega^2 - v^2 p^2]}{(p^2 - p_1^2)(p^2 - p_2^2)(p^2 - p_3^2)(p^2 - p_4^2)}.$$

Nous connaissons déjà le comportement de $\psi(x)$ au voisinage de $x = 0$.

Pour x grand, on observera que l'intégrale $\int_0^{-\infty} h(p) e^{px} dp$ est une intégrale de Laplace, $h'(p)$ étant la première dérivée de $h(p)$ non nulle

pour $p = 0$, on connaît la partie principale en $\frac{1}{x}$ de $\psi(x)$, cette quantité s'écrit tant que K est petit et que $p_i \# p_{i,o}$:

$$\psi(x) \sim -\frac{K}{\pi^3}\left(\frac{\lambda}{x}\right)^2 \cdot \frac{1}{(-\Gamma + i\Delta\Omega)^2}.$$

λ étant la longueur d'onde dans le vide de la radiation incidente.

Cette fonction s'amortit donc sur une distance de quelques longueurs d'onde, à partir du dioptre, quelle que soit la pression de la vapeur de mercure.

On peut donc dire que, tant que la pression de mercure reste inférieure à 1 cm., l'onde ψ, qui s'ajoute à l'onde φ, classique, exponentiellement amortie, ne contribue au champ total que proportionnellement à la pression, $\varphi(x)$ étant de l'ordre de 1 et $\psi(x)$ de l'ordre de K; cette contribution n'atteignant environ 5 o/o du champ total que pour une pression de 8 mm., elle est parfaitement négligeable aux basses pressions que l'on atteint aux températures usuelles où fonctionne une cuve d'absorption.

De plus, l'onde $\varphi(x)$ s'amortit en $e^{-2\pi\left(\frac{\varkappa}{\lambda}\right)x}$, ce qui, pour $p = 8$mm., nécessite ($\varkappa \sim 0{,}05$) un trajet de quelques longueurs d'onde pour obtenir un affaiblissement en 1/2, et, quelques milliers pour les pressions usuelles ($\varkappa$ proportionnel à N), alors que l'onde $\psi(x)$ s'amortit toujours en quelques longueurs d'onde.

Cette onde n'intervient donc plus dans le champ tel qu'il est après la traversée d'une faible épaisseur de vapeur absorbante et on ne peut pas envisager de le déceler par transmission.

Cas des hautes pressions de vapeur de mercure ($p \gg 1$ cm.). — Tout ce qui précède ne vaut que si K est très petit, de manière à justifier des développements du premier ordre en K; cette condition équivaut à Γ petit devant 1, ou N petit également par rapport à la valeur qui donne $K = \frac{1}{2}$ par exemple.

C'est-à-dire que notre calcul n'est justifié en gros que dans « la première zone de réflexion sélective ».

Remarquons toutefois que dans la formule qui nous donnait M, pour Γ grand devant 1, on a $\Gamma \doteq A/\sqrt{2}.N$, et des quatre termes linéaires en K, le premier tend vers une saturation : $\frac{K}{i\Gamma}$, K étant aussi proportionnel à N, mais les trois autres disparaissent comme devenant de l'ordre de $\frac{1}{N}$. Ceci laisse à penser que l'on peut revenir à une définition du champ du type envisagé par Voigt, puisque les termes correctifs disparaissent.

Ce fait s'explique d'ailleurs assez bien d'une manière plus directe;

dire que $\Gamma \gg 1$, c'est dire que l'amortissement devient très supérieur à la largeur Doppler comptée en pulsations, dans ces conditions, on doit tendre vers une formule de dispersion classique, obtenue en négligeant l'effet Doppler qui devient une cause minime d'élargissement et surtout de perturbation de la phase des oscillateurs.

On doit donc tendre vers la solution que l'on obtient en considérant les oscillateurs fixes par rapport au dioptre et pourvus d'un amortissement convenable.

En supposant que le phénomène est de ce type, on explique l'allure des courbes que nous avons obtenues expérimentalement pour la « deuxième zone de réflexion sélective », soit pour des pressions largement supérieures au centimètre.

On doit observer que pour $\Gamma \gg \delta$, on commence à observer une interaction notable de la lumière émise par un centre hyperfin avec les atomes de mercure responsables de l'émission des centres voisins qui en sont distants de quelques Γ dans l'échelle des fréquences (séparation de l'ordre de 10δ) et on ne peut plus raisonner comme précédemment, en associant à la raie émise par un isotope, cet isotope seul dans la vapeur réfléchissante.

On peut donc écrire :

$$M^2 - 1 = \sum_j \frac{K_j}{\Delta\Omega_j + i\Gamma}.$$

$\Delta\Omega_j$ étant le rapport $\frac{\omega j - \Omega}{\delta}$, de l'écart de fréquence entre la longueur d'onde réfléchie Ω avec le centre hyperfin ω_j avec la demi-largeur Doppler : K_j est le coefficient numérique proportionnel à la densité de la vapeur réfléchissante, pour le centre hyperfin j :

$$K_j = \frac{Me^2 f}{m\Omega\delta} N_j = N_j \frac{A}{K}$$

tant que $\sum_j$ est petit devant 1, on peut écrire :

$$M = 1 + \frac{1}{2}\sum_j \frac{K_j \Delta\Omega_j}{(\Delta\Omega_j)^2 + \Gamma^2} - \frac{1}{2}\sum_j \frac{K_j \pi}{(\Delta\Omega_j)^2 + \Gamma^2}\, i$$

en mettant en évidence l'indice de phase ν et l'indice d'extinction $\varkappa$:

$$M = \nu - i\varkappa.$$

Le facteur de réflexion sous l'incidence normale de la radiation de longueur d'onde $\lambda = \frac{c}{2\pi\Omega}$ est alors :

$$R = \left| \frac{n_0 - M}{n_0 + M} \right|^2$$

n_0 étant l'indice (1,5) de la silice fondue.

Nous ne pouvons plus négliger la partie imaginaire $i\chi$ de M, mais elle n'intervient cependant que comme un terme correctif dans le calcul de R, qui évolue, en première approximation du moins comme :

$$(0,5 - \nu)^2.$$

La réflexion est d'autant plus forte que ν est plus grand en valeur absolue et négatif, d'autant plus faible qu'il est plus grand et positif.

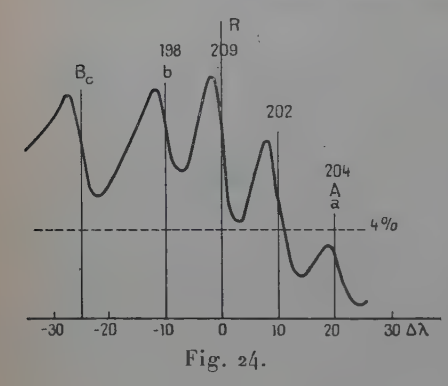


Fig. 24.

Nos résultats expérimentaux s'expliquent qualitativement de la manière suivante :

a) *Diminution de la réflexion au voisinage des longueurs d'onde des centres hyperfins de grande longueur d'onde :* pour $\Omega \neq \omega_{204}$, par exemple, dans la somme $\sum_j$, les quatre autres composantes hyperfines donnent une contribution positive à la valeur de ν, ce qui a pour effet d'étouffer le terme $\frac{K_{204}\Delta\Omega_{204}}{(\Delta\Omega_{204}^2 + \Gamma^2}$, qui peut lui être négatif, et cela d'autant plus que le terme relatif à Hg_{202} est le plus proche et a une grande intensité par rapport à λ_{204}.

b) *Par le processus inverse, accroissement de la réflexion pour les longueurs d'onde voisines de celles du centre hyperfin de cette longueur d'onde.*

c) Et tous les intermédiaires possibles s'expliquent qualitativement.

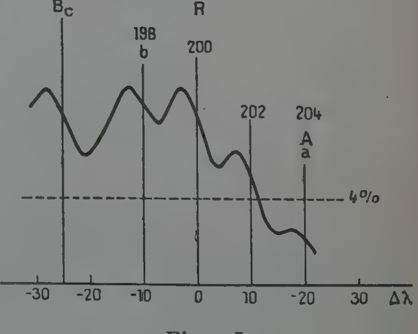


Fig. 25.

Nous avons calculé le profil théorique de réflexion pour $\Gamma = 2$ ($t = 276°$ ou $p = 142$ mm.). Ce profil est indiqué sur la figure 24. En fait notre procédé expérimental d'analyse a une largeur de l'ordre de 6 mA (finesse 11), et la courbe expérimentale ne doit pas être très différente de celle que l'on obtient en attribuant à chaque longueur d'onde λ un facteur de réflexion égal à la valeur moyenne de ce facteur, prise sur 6 mA de la courbe théorique. On obtient alors la

courbe 25 dont l'allure concorde d'une manière satisfaisante avec celle des courbes qui ont été obtenues expérimentalement. La figure 25 qui représente cette courbe calculée s'intercale entre deux courbes expérimentales à condition de diminuer les intensités théoriques dans le rapport 2/3 environ, ce qui montre que notre calcul, s'il explique bien les variations relatives, donne cependant une trop forte intensité à la réflexion.

Note. — Un calcul classique (24) donne la probabilité de rapprochement de deux atomes de la vapeur à une distance r, compte tenu de la distance moyenne $\sqrt[3]{\overline{N}} = r_m$ de ces atomes à une pression donnée. On se rend compte que même à 760 mm. de pression ($r_0 = 44$A) on ne peut pas envisager une réflexion due à des molécules Hg.Hg*. Les formules qui donnent la variation de fréquence (25) propre d'une telle paire par rapport à la fréquence non perturbée montrent qu'il faut $r = 19$ A pour obtenir un déplacement de l'ordre de $\frac{1}{2}\Gamma_{760}$, et ceci correspond à une proportion infime des atomes de la vapeur :

$$P(r)dr = k\frac{r^2}{r_0^2}e^{-\frac{1}{6}\left[1-\frac{r^3}{r_0^3}\right]^2}dr$$

$$E = \frac{C_{II} - C_I}{r^6}$$

$$\Delta\lambda_{MA} = \frac{4,4 \cdot 10^8}{r_A^6}.$$

(Laboratoire de Recherches physiques de la Sorbonne)

BIBLIOGRAPHIE

(1) WOOD. — *Researches in physical optic*, N. Y., 1913.
(2) J. L. COJAN. — *Diplôme d'études supérieures*, Paris, 1948.
(3) R. LENNUIER. — *Thèse Paris. Annales de Physique*, 1947, **2**, 223.
(4) O. SCHNETTLER. — *Zeitschrift für Physik*, 1930, **65**, 55.
(5) RUMP. — *Zeitschrift für Physik*, 1924, **29**, 196.
(6) NATHANSON. — *Phil. Mag.*, 1919, **38**, 269.
(7) HANSEN et WEBB. — *Physical rewiew*, 1947, **71**, 483 et 1947, **72**, 532.
(8) J. CABANNES. — *Comptes rendus*, 1952, **235**, 1634.
(9) LAURISTON, WELSH, KASTNER. — *Canadian Journal of researches* (sect. A) 1950, **28**, n° 2, 93.
(10) LAURISTON, WELSH. — *Canadian Journal of researches* (sect. A), 1951, **29**, n° 3, 217.
(11) SIEKMANN. — *Thèse Berlin*, 1940.
(12) R. LENNUIER et J.-L. COJAN. — *Comptes rendus*, 1949, **228**, 670.

(13) Mrozowski. — *Bull. Acad. Pol.*, 1930, 464 et 1931, 489.
(14) Buhl. — *Zeitschrift für Physik*, 1938, **109**, 187.
(15) J.-L. Cojan. — *Comptes rendus*, 1950, **231**, 337.
(16) Dufour. — *Thèse Paris*, Masson, 1950.
(17) J.-L. Cojan et R. Lennuier. — *Comptes rendus*, 1949, **228**, 670 ; *Comptes rendus*, 1949, **228**, 1710.
(18) Dufour et Jacquinot. — *Journal des recherches du C. N. R. S.*, 1948, no 6, 101.
(19) Schuler et Keyston. — *Zeitschrift für Physik*, 1931, **72**, 423.
(20) Fuchtbauer, Joos, Dinkelacker. — *Ann. der Physik*, 1923, **71**, 224.
(21) Voigt. — *Sitzungberichte Math. Phys.*, München, 1912, 603.
(22) Weisskopf. — *Ann. der Physik*, 1931, **9**, 23.
(23) Weisskopf. — *Physik. Zeitschrift.*, 1933, **34**, 1.
(24) Rocard. — *Thermodynamique*, Masson et Cie, édit., 398.
(25) R. Lennuier et Y. Crenn. — *Comptes rendus*, 1943, **216**, 583.

UNE MÉTHODE NOUVELLE DE MESURE DE LA DIFFUSION MULTIPLE. APPLICATION A L'ÉTUDE DE LA DÉSINTÉGRATION DU MÉSON μ (1)

Par C. MABBOUX-STROMBERG

SOMMAIRE. — L'importance prise par l'étude du rayonnement cosmique, tant en France qu'à l'étranger, étude qui a conduit par exemple à la découverte d'un véritable spectre de particules de masses intermédiaires entre l'électron et le proton, justifie les efforts fournis par de nombreux laboratoires spécialisés, tels que la construction de grandes chambres de Wilson, les expositions de détecteurs en montagne ou bien à bord de ballons et la création de champs magnétiques forts ou étendus.

Les moyens d'action sur ce rayonnement sont, le plus souvent, le freinage dans des écrans matériels et la déviation magnétique.

La courbure de la trajectoire d'une particule ultra-relativiste dans le champ électrique fourni par de gros générateurs n'a encore jamais été envisagée en raison de la difficulté d'obtenir des différences de potentiel de valeurs suffisantes. Il est cependant un moyen d'échapper à cette difficulté en tirant parti du champ électrique élevé avoisinant le noyau des atomes qui constituent le milieu traversé par la particule. L'action cohérente et régulière d'un ehamp perturbateur étendu, comme le champ magnétique donné par un électro-aimant, est alors remplacée par une action microscopique désordonnée, parfois brutale, communiquant à la particule incidente une succession d'impulsions dont les amplitudes et les fréquences sont régies par les lois du hasard. C'est la somme vectorielle de toutes ces impulsions élémentaires qui écarte progressivement la particule de la ligne droite idéale et lui fait décrire une trajectoire sinueuse, d'autant plus accidentée que la particule sera plus lente ou plus légère.

Analytiquement, on peut représenter ces trajectoires par des fonctions aléatoires stationnaires de variables judicieusement choisies, et c'est toujours sous cet aspect que l'on a l'habitude de traiter les problèmes posés par la diffusion multiple. C'est Rutherford qui mit en évidence la déviation par les atomes lourds, des particules α émises par le Polonium. Mais ce n'est que quinze ans plus tard que Williams donnera une interprétation détaillée de la diffusion multiple des particules relativistes, observée dans le gaz de la chambre de Wilson ou dans les écrans épais.

(1) Thèse présentée le 28 mai 1953 à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques.

Depuis que l'emploi de la plaque photographique figure au nombre des techniques de la physique corpusculaire (Blau et Wambacher, 1937) de nombreux expérimentateurs se sont efforcés d'accéder à la charge, à la quantité de mouvement et à la vitesse de la particule ayant traversé l'émulsion, par une étude minutieuse de la distribution des déviations successives observées le long de sa trajectoire.

Cet effet, communément désigné sous le terme imagé de « Scattering » a toujours été analysé sur la projection de la trajectoire dans un plan parallèle à celui de l'émulsion.

Le présent travail, exécuté sous la direction du Professeur L. Leprince-Ringuet, dans son laboratoire à l'Ecole Polytechnique, a pour but la recherche des conditions expérimentales les plus favorables à l'étude de la diffusion multiple, et plus particulièrement sa mesure sur la projection de la trajectoire dans un plan perpendiculaire à celui de l'émulsion.

Nous proposons une méthode de calcul, qui diffère des précédentes, en ce sens qu'elle fait intervenir la notion de variance minimum sur l'estimation de la diffusion mesurée et qu'elle est mieux adaptée à ces nouvelles données expérimentales.

En procédant de cette façon, nous avons examiné les électrons émis lors de la désintégration β du méson μ afin de préciser les paramètres de leur fonction de répartition.

Au cours de cette étude, un cas de désintégration anormale a été observé, que l'on peut identifier à l'émission d'une particule rapide par un méson kappa au repos.

PREMIÈRE PARTIE

LA DIFFUSION MULTIPLE COULOMBIENNE

On connaît bien les changements brusques de direction qui apparaissent le long de la trajectoire d'une particule électrisée traversant la matière. Plus souvent, c'est la somme d'un grand nombre de petits effets semblables que l'on observe et qui donnent à la trace un aspect sinueux.

Les variations de quantité de mouvements associées à ces changements de direction sont nécessairement transmises au milieu environnant ; comme elles ne sont que rarement accompagnées d'effet secondaire visible, on doit les attribuer à un choc élastique avec un atome lourd du milieu.

L'étude statistique de la distribution des déviations observées nous renseignera sur les sections efficaces de choc avec ces atomes ; cette distribution dépend de la composition de la matière traversée et des propriétés de la particule diffusée. Si l'on sait exprimer en ces termes la section efficace de choc élémentaire, alors il est un moyen de carac-

tériser la particule incidente à partir des propriétés statistiques de la diffusion multiple observée. Par exemple, on pourra former le deuxième moment de toutes les déviations mesurées, dûment normalisées, et le comparer à son espérance mathématique.

Nous nous proposons de montrer comment on peut relier cette espérance au produit de la vitesse par la quantité de mouvement de la particule, et nous justifierons l'emploi du deuxième moment par l'étude du critère d'exhaustivité.

Auparavant, nous exposerons brièvement la théorie classique de la diffusion élémentaire, telle qu'elle a été proposée la première fois par Williams (33) (36) dont les conclusions ont été largement confirmées par son interprétation quantité développée ultérieurement (23) (27).

LE PARAMÈTRE D'IMPACT

Soit XX′ un axe indéfini représentant la trajectoire que décrirait la particule en l'absence de tout potentiel extérieur. On suppose la particule scalaire, ponctuelle, porteuse de la charge ze. Sa quantité de mouvement et sa vitesse sont respectivement p et βc ; à l'instant $t = 0$ elle occupe la position $x_0 = 0$, alors à l'instant $t \neq 0$ elle occupera la position $x_t = \beta ct$ comptée sur l'axe (fig. 1).

Considérons un point fixe, A, de l'espace environnant la trajectoire, défini par sa distance r à l'axe XX′ et par son abscisse $x = 0$. A chaque instant t on peut associer la distance, l, de la particule au point A :

$$l^2 = r^2 + \beta^2 c^2 t^2$$

ainsi que le module du champ électrique en A engendré par la particule :

$$|\vec{E}| = \frac{ze}{l^2}.$$

La composante normale à l'axe XX′ de ce vecteur vaut :

$$E_n = |\vec{E}| \frac{r}{l}.$$

Elle est maxima lorsque $l = r$; nous appelons r le paramètre d'impact, au sens qui lui a été donné par Rutherford, c'est lui qui définit la grandeur du choc.

On se propose de calculer l'impulsion communiquée à un noyau fixe porteur de la charge Ze placé en A, lorsque la particule décrit l'axe en son entier.

Comme nous ne nous occupons que des choc accompagnés d'un transfert d'impulsion petit en regard de la quantité de mouvement totale, seule la composante normale à XX′ de cette impulsion inter-

viendra dans le calcul de l'angle de déflexion, c'est le Δ_p latéral de Fermi (13) :

$$\Delta_p = \int_{-\infty}^{+\infty} E_n Ze dt = \frac{Ze}{\beta c} \int_{-\infty}^{+\infty} E_n dx.$$

Il est évident que l'impulsion communiquée à la particule est égale en grandeur et opposée en signe à celle reçue par le noyau, mais comme la quantité r change de signe suivant qu'elle représente la distance de la particule au noyau ou celle du noyau à la particule, l'intégrale écrite exprime aussi l'impulsion latérale reçue par la particule. Elle jouit des propriétés d'invariance relativiste : en effet, les variables E_n et x, exprimées dans le système lié à a particule, deviennent dans le système du laboratoire $\alpha^{-1}.E$ et $\alpha.x$, et leur produit garde la même valeur dans les deux systèmes, lorsqu'on doit les distinguer l'un de l'autre.

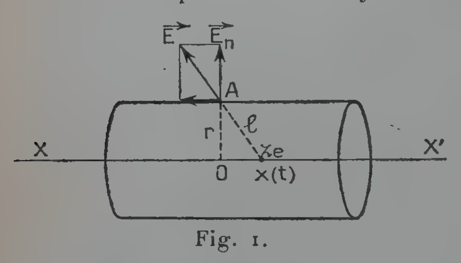


Fig. 1.

Pour calculer cette intégrale, introduisons comme le fait Rossi (34) l'élément différentiel de flux du champ électrique qui traverse l'élément de cylindre de rayon r et de hauteur dx, axé sur XX' :

$$d\mathcal{F} = E_n . 2\pi r . dx.$$

Alors le flux total sortant de la surface d'un cylindre indéfini, d'axe XX', tend vers :

$$\mathcal{F} = 2\pi r \int_{-\infty}^{+\infty} E_n dx.$$

Or, le théorème de Gauss nous dit que le flux du champ électrique traversant une surface fermée est lié aux charges enveloppées par cette surface :

$$\mathcal{F} = 4\pi ze$$

d'où la valeur de l'intégrale cherchée :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} E_n dx = \frac{2.ze}{r}.$$

En portant ce résultat dans l'expression donnant Δp on a :

$$\Delta p = \frac{2.Zze^2}{r\beta c}.$$

Il est important de remarquer que cet artifice de calcul n'est permis que dans la mesure où r n'a pas varié avec le temps. Cette condition exige que la masse de la particule incidente soit suffisamment

petite devant celle du centre diffuseur pour que l'énergie communiquée à ce dernier soit négligeable ; en outre, elle suppose que la vitesse de la particule est suffisamment grande et la déflection assez petite pour que sa direction après le choc puisse être confondue avec l'axe XX'. Nous admettrons que cette condition est toujours remplie par un électron provenant de la désintégration d'un méson μ observée dans l'émulsion photographique.

SECTION EFFICACE DE DIFFUSION SIMPLE

Connaissant Δp et p on trouve simplement l'angle de déflexion Φ de la trajectoire en écrivant la condition de conservation de l'impulsion :

$$\Phi = \frac{\Delta p}{p} \text{ si } \beta \simeq 1.$$

Puisque Δp est une fonction du paramètre d'impact r, on peut chercher la valeur de r qui donnera la déflexion Φ :

$$r(\Phi) = 2Zze^2(p\beta c)^{-1} . \Phi^{-1}$$

d'où la section efficace de production de chocs suivis d'une déviation supérieure à Φ :

$$a(\Phi) = \pi r^2(\Phi).$$

La valeur absolue de la différentielle de cette expression est égale à la surface d'une couronne de rayon r et de largeur dr, elle vaut :

$$da(\Phi) = 2\pi r(\Phi) . dr(\Phi).$$

Cette surface définit la section efficace classique de production de chocs accompagnés de déviations comprises entre Φ et $\Phi + d\Phi$; c'est la section efficace différentielle de diffusion simple proposée oar Williams (loi en Φ^{-3}) :

$$d\sigma(\Phi, \Phi + d\Phi) = \frac{8\pi Z^2 z^2 e^4}{p^2 \beta^2 c^2} \cdot \frac{1}{\Phi^3} . d\Phi.$$

CONDITIONS AUX LIMITES

Avant d'aborder l'étude statistique d'un ensemble de diffusions élémentaires ainsi définies, il est indispensable de connaître les limites de validité de la section efficace que nous venons d'établir, limites imposées par les hypothèses que nous avons avancées au début de ce calcul.

1° Nous avons d'abord supposé le centre diffuseur ponctuel, ce qui laisse entendre que notre calcul s'applique encore lorsqu'on choisit le paramètre d'impact aussi petit que l'on veut.

En fait les choses ne se présentent plus de la même façon si le centre diffuseur est un noyau de dimensions finies. Le paramètre d'impact peut bien tendre vers zéro, mais lorsqu'il devient plus petit que le rayon, r_0, du noyau de l'atome diffuseur, la particule pénètre dans le noyau. Or le potentiel électrostatique qui règne à l'intérieur d'un noyau n'est plus donné par la loi de Coulomb appliquée aux charges ponctuelles.

Si nous supposons, par exemple, la charge uniformément répartie à l'intérieur d'une petite sphère de rayon r_0, la valeur du potentiel passe par un maximum à la périphérie pour décroître ensuite jusqu'à zéro en un point situé au centre. Ainsi, à tout paramètre d'impact inférieur à r_0, correspondra une déviation plus petite qu'une certaine déviation maxima, Φ_{max}, celle qui correspond à un paramètre d'impact égal à r_0, soit :

$$\Phi_{max} = (2 . Zze^2) . (r_0 p \beta c)^{-1}$$

en prenant pour r_0 la valeur donnée par :

$$r_0 = 0{,}57 r_e Z^{1/3}$$

r_e étant le rayon classique de l'électron.

Si au lieu de supposer la charge uniformément répartie, on admet qu'elle est portée par les protons, alors on peut appliquer le même raisonnement à l'étude d'un choc de la particule avec un proton à l'intérieur du noyau et l'on trouve :

$$\Phi'_{max} = (2 . ze^2) . (0{,}57 r_e p \beta c)^{-1}$$

valeur toujours plus petite que la précédente. On voit que dans un cas comme dans l'autre, on ne saurait observer une déviation élémentaire coulombienne supérieure à la déviation Φ_{max} subie par la particule lorsqu'elle rase le noyau. On exprime ce fait en disant que la probabilité d'observer Φ est nulle pour $\Phi > \Phi_{max}$.

2° Jusqu'à présent, nous n'avons pas parlé des électrons du milieu diffusant qui, eux, ne répondent plus du tout à la condition exigée du centre diffuseur qui doit avoir une masse grande devant celle de la particule diffusée. C'est qu'en fait, les électrons libres dans la matière sont rares et leur nombre, comparativement à celui des électrons liés, est toujours très petit. Les électrons étant groupés autour des noyaux diffuseurs, leur présence modifie la distribution des angles après choc sur l'atome, si choc il y a, mais non la succession des chocs.

L'étude de l'effet d'écran des électrons sur le champ du noyau a été entreprise par de nombreux auteurs. Il est maintenant classique

d'admettre que l'on a une bonne représentation de la réalité en adoptant un potentiel coulombien « coupé », la coupure étant faite à une valeur de r égale à r_a, rayon du modèle d'atome de Thomas-Fermi (32) :

$$r_a = (137)^2 . r_0 Z^{-1/3}.$$

Ainsi, nous devons poser qu'à toute distance du centre supérieur à r_a, la valeur du potentiel est nulle. On définit ainsi une limite inférieure de Φ, soit Φ_{min}, au dela de laquelle la probabilité d'observer une déviation est constamment nulle :

$$\Phi_{min} = \Phi(r_a) = (2 . Ze^2 z) . (r_a p \beta c)^{-1}.$$

3° Dans tout ce qui précède, nous n'avons fait intervenir à aucun moment le rôle des interactions nucléaires qui pourraient avoir lieu entre la particule incidente et le noyau diffuseur.

Il est difficile d'introduire cet effet dans le cadre de la théorie élémentaire que nous venons d'établir. On peut remarquer cependant que la contribution de la diffusion nucléaire restera faible devant celle de la diffusion coulombienne car nous savons que les sections efficaces des diverses interactions nucléaires possibles ont des valeurs généralement voisines des dimensions géométriques du noyau. A de telles sections efficaces correspondent des libres parcours d'interaction de l'ordre de 100 g/cm², soit une longueur de 40 cm. environ dans nos émulsions, longueur supérieure d'un facteur cent à celle qui nous est nécessaire pour mener à bien la conduite d'une mesure de diffusion.

Enfin, l'application que nous avons faite de la méthode de la diffusion multiple à l'étude des électrons restreint encore les chances d'observer une interaction parasite dont on n'aurait pas tenu compte dans la théorie élémentaire.

PROPRIÉTÉS PROJECTIVES

La déviation de la trajectoire au cours d'un choc est une grandeur difficilement accessible à la mesure ; aussi nous simplifierons avantageusement le travail expérimental en nous limitant au problème plan.

Considérons à cet effet une déflexion, Φ, déterminée par un centre diffuseur, A, voisin de XX'. Puisqu'il y a choc, c'est que la distance de A à XX' est de l'ordre de grandeur du rayon classique de l'atome et nous sommes en droit de confondre A avec XX' à l'échelle de nos appareils d'observation (fig. 2).

Soit P et P' deux plans orthogonaux passant par XX', et soit φ et φ' les valeurs de Φ projetées sur ces deux plans. Il existe, pour un Φ donné, autant de couples différents φ_i, φ'_i qu'il est de valeurs permises

de l'angle d'azimut, Ψ_i, situant le choc dans l'espace. Les φ et les φ' sont géométriquement liés par les relations :

$$\varphi_i = \Phi \cos \Psi_i \qquad \varphi'_i = \Phi \sin \Psi_i.$$

Or la théorie élémentaire de la diffusion simple qui nous a servi de point de départ suppose que tous les Ψ_i sont également probables puisque nous n'avons fait intervenir que des potentiels à symétrie sphérique au cours du calcul de l'interaction entre la particule incidente et le centre diffuseur.

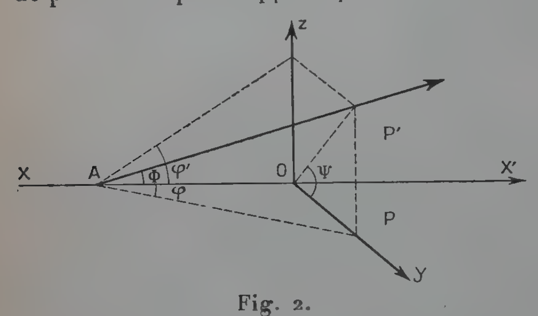


Fig. 2.

L'angle Ψ_i étant alors une variable aléatoire, de probabilité stationnaire, on peut écrire les relations simples suivantes entre les différentes moyennes :

$$\overline{\varphi_i} = \Phi\, \overline{\mathrm{Cos}\, \Psi_i} = 0 \qquad \overline{\varphi_i^2} = \Phi^2\, \overline{\mathrm{Cos}^2\, \Psi_i} = \frac{1}{2}\Phi^2 \qquad \overline{\varphi_i . \varphi'_i} = \Phi^2\, \overline{\mathrm{Sin}\, \Psi_i\, \mathrm{Cos}\, \Psi_i} = 0$$

$$\overline{\varphi'_i} = \Phi\, \overline{\mathrm{Sin}\, \Psi_i} = 0 \qquad \overline{\varphi'^2_i} = \Phi^2\, \overline{\mathrm{Sin}^2\, \Psi_i} = \frac{1}{2}\Phi^2 \qquad \overline{\varphi_j . \varphi'_j} = \Phi^2\, \overline{\mathrm{Sin}\, \Psi_j . \mathrm{Cos}\, \Psi_i} = 0$$

Nous voyons que φ et φ' sont des variables indépendantes et centrées; leurs valeurs quadratiques moyennes sont égales et valent $\frac{1}{2}\Phi^2$.

Il est intéressant de comparer la distribution statistique des φ à celle des Φ.

En se limitant à la comparaison des moments du second ordre qui seules interviendront au cours de cette étude, on établit aisément la relation suivante entre les angles projetés et les angles vrais :

$$\text{moy.} \sum \varphi_i^2 = \frac{1}{2} \text{moy.} \sum \Phi_i^2.$$

LA DIFFUSION MULTIPLE

Lorsqu'une particule électrisée chemine dans un milieu homogène, elle subit un grand nombre de petites déflexions consécutives aux chocs avec les atomes qu'elle a voisinés. Leur fréquence est proportionnelle au nombre d'atomes par unité de volume du milieu traversé ainsi qu'à la section efficace de chocs que nous avons précédemment établie; leur nombre est proportionnel au chemin s effectivement par-

couru dans la matière, longueur généralement très peu différente de l'épaisseur traversée.

Ainsi, pour un milieu constitué par N atomes par centimètre cube d'un élément Z, le nombre de chocs accompagnés d'une déviation comprise entre Φ et $\Phi + d\Phi$ est :

$$n_s(\Phi, \Phi + d\Phi) = \frac{8\pi N Z^2 z^2 e^4}{p^2\beta^2 c^2} \cdot \frac{s}{\Phi^3} \cdot d\Phi$$

il est commode de représenter ce nombre par :

$$dn = n_s(\Phi, \Phi + d\Phi) = \mathcal{N}(s, \Phi) . d\Phi$$

ce qui introduit $\mathcal{N}(s, \Phi)$ qui joue le rôle de la densité de probabilité de l'événement Φ.

Expérimentalement, on observe l'angle que font les directions à l'entrée et à la sortie de la cellule s ; pratiquement on mesure la projection de cet angle sur un plan de référence fixe, choisi parallèle à la direction moyenne de la trajectoire : elle est égale à la somme algébrique des déviations élémentaires projetées, φ_i, survenues le long de la cellule de diffusion :

$$\theta(s) = \sum \varphi_i$$

chaque angle $\theta_j(s)$ observé est la somme d'un grand nombre de petits effets indépendants et centrés, φ_i, donc si leur nombre compté dans une cellule tend vers l'infini, la fonction de distribution des $\theta_j(s)$ tend vers une loi de Gauss qui sera entièrement définie par son σ^2 qui vaut μ_2. En ce cas, on sait que la meilleure détermination du paramètre de distribution des $\theta_j(s)$ est obtenue en formant l'estimation m_2 de μ_2 à partir des différentes valeurs des $\theta_j(s)$ retenues :

$$m_2 = \frac{1}{n} \sum \theta_j^2(s) .$$

En fait, les collisions dans l'intervalle d'une cellule sont en nombre fini et, comparativement à une distribution de Laplace-Gauss, leur fonction de répartition en φ^{-3} favorise un peu les grands angles par rapport aux petits. Il en résulte que les différents moments sur la variable $\theta(s)$ ne sont plus donnés par la fonction caractéristique de la loi de Gauss et qu'il n'est plus possible, en particulier, d'estimer la valeur quadratique moyenne à partir de la moyenne des valeurs absolues.

Cependant, les critères du caractère gaussien de la distribution d'une variable aléatoire ont été appliqués par plusieurs expérimentateurs (16) et nous-même à des séries de valeurs de θ mesurées sur différentes traces. Dans presque tous les cas, seulement deux valeurs de θ sur cent valeurs observées s'écartent significativement de la distribution normale.

Une interprétation rigoureuse de cet effet a d'ailleurs été proposée par plusieurs auteurs (17) (18) (25).

La petitesse de l'écart entre la distribution vraie et une distribution gaussienne pure montre qu'une estimation paramétrique exhaustive ne sera presque pas plus informative que l'estimation du moment d'ordre deux, recommandée par la méthode du maximum de vraisemblance appliquée à la loi de Gauss.

Nous allons montrer qu'à partir de la loi de probabilité élémentaire des φ_i, il est possible de calculer rigoureusement le deuxième moment de la distribution des angles de diffusion multiple observés, $\theta_j(s)$, sans introduire aucune hypothèse sur cette distribution.

Sachant que :

$$\theta(s) = \sum \varphi_i$$

formons :

$$\theta^2(s) = \sum \varphi_i^2 + 2\sum \varphi_i \varphi_j.$$

$\theta(s)$ est une variable aléatoire centrée, on prend la moyenne des $\theta^2(s)$ sur n cellules identiques successives :

$$\overline{\theta^2}(s) = \frac{1}{n}\overline{\sum \varphi_i^2} + \frac{2}{n}\overline{\sum \varphi_i \varphi_j}.$$

Puisque les déviations élémentaires consécutives sont évidemment indépendantes, la moyenne de leur produit rectangle est nulle et il vient :

$$\overline{\theta^2}(s) = \frac{1}{n}\overline{\sum \varphi_i^2} = \frac{1}{2} \cdot \frac{1}{n}\overline{\sum \Phi_i^2}.$$

Or la valeur théorique $\sum \Phi_i^2$ vers laquelle tend la moyenne $\overline{\sum \Phi_i^2}$ est donnée par l'intégrale :

$$\mu_2(\Phi) = \int_{\Phi_{min}}^{\Phi_{max}} \Phi^2 \mathcal{N}(s, \Phi) d\Phi$$

étendue aux limites de validité de la loi de probabilités des angles élémentaires. L'intégration est immédiate et donne :

$$\overline{\theta^2}(s) = \frac{1}{2}\int_{\Phi_{min}}^{\Phi_{max}} \Phi^2 \mathcal{N}.(s, \Phi).d\Phi = \frac{8\pi N Z^2 z^2 e^4}{p^2\beta^2 c^2} .s.\mathrm{Log}\ 181.Z^{-1/3}$$

c'est le moment d'ordre deux de la loi de distribution, $P(\theta)$, de la variable $\theta(s)$ dont l'estimation est obtenue en faisant la somme des carrés de tous les angles mesurés sur des bases de diffusion de longueurs égales à s.

Notons que cette expression est rigoureuse, bien que la loi de répartition des $\theta(s)$ ne soit pas exactement gaussienne.

DÉFINITION DES CONSTANTES DE DIFFUSION MULTIPLE

La valeur de $\overline{\theta^2}(s)$ que nous venons de calculer peut se mettre sous la forme :

$$\overline{\theta^2}(s) = \frac{k}{p^2\beta^2c^2} \times s.$$

k est une constante qui dépend du milieu traversé par la particule de charge unité. Si le milieu est constitué par un mélange d'atomes A_i uniformément répartis, il faut remplacer le nombre total de chocs par longueur s, qui nous a servi à calculer la valeur quadratique moyenne, par la somme des nombres partiels des chocs avec chaque sorte d'atomes présents :

$$n_s(\Phi, \Phi + d\Phi) = \sum_i n_{i,s}(\Phi, \Phi + d\Phi)$$

la nouvelle valeur de k est donnée par la combinaison linéaire évidente :

$$k = \sum_i 8\pi N_i Z_i^2 e^4 . \text{Log } 181 . Z_i^{-1/3} = r_e(m_0c^2)^2 . 8\pi \sum_i N_i Z_i^2 \text{ Log } 181 \; Z_i^{-1/3}$$

r_e étant le rayon classique de l'électron et m_0c^2 sa masse.

On supposera toujours p constant le long de la trace analysée, ce qui est raisonnable puisque dans le cas des électrons ayant une énergie supérieure à quelques MeV, la perte d'énergie par centimètre de parcours n'est que 0,3 MeV et que les traces observées ont le plus souvent une longueur inférieure à 2 mm.

Si l'on considère une particule, ayant un $p \times \beta$ donné, qui traverse un milieu de constante k, il est commode d'introduire la nouvelle constante :

$$K = \frac{k}{p^2\beta^2c^2}$$

de sorte que :

$$\overline{\theta^2}(s) = Ks$$

et le problème de la détermination du produit $p \times \beta$ d'une particule donnée est ainsi ramené à l'estimation paramétrique de K, déduite de la série des $\theta_i(s)$ mesurés.

FACTEUR DE LISSAGE

Nous avons supposé que chaque $\theta_i(s)$ est la mesure de l'angle entre deux tangentes prises en deux points distants de s, compté sur la trajectoire. Mais le tracé de la tangente à une courbe est une opération imprécise et, la construction terminée, c'est toujours en fait

d'une petite corde que l'on dispose. Il est donc important de connaître l'influence de cette perturbation inévitable sur le $\overline{\theta^2}(s)$.

Considérons, à cet effet, la projection sur le plan du papier, d'une trajectoire qui lui est sensiblement parallèle et traçons deux petites cordes C_1 et C_2 intéressant chacune deux tronçons de même longueur s, dont les points milieux sont distants de s' sur la projection.

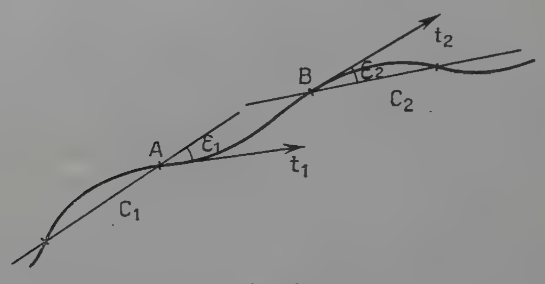


Fig. 3.

Nous admettons que les écarts entre les longueurs projetées et les longueurs vraies sont négligeables devant ces longueurs. Il est en effet toujours possible de choisir s et s' suffisamment petits pour que la portion de trajectoire ainsi analysée s'éloigne aussi peu que l'on voudra de la ligne droite, alors la projection sur un plan parallèle à sa direction n'altère pas les longueurs comptées sur cet axe.

Soit t_1 et t_2 deux tangentes à la trajectoire, prises respectivement aux deux extrémités en regard, A et B, des deux tronçons. Appelons θ_t l'angle qu'elles font entre elles. Chacune de ces tangentes fait avec la corde qui lui correspond l'angle ε_1, puis ε_2, alors l'angle que font les deux cordes entre elles peut s'écrire :

$$\theta_c = (C_1, C_2) = (C_1, t_1) + (t_1, t_2) + (t_2, C_2) = \varepsilon_1 + \varepsilon_2 + \theta_t.$$

ε_1 et ε_2 ne dépendent pas des accidents survenus entre A et B. Ils sont donc indépendants et le calcul de leur fonction de distribution ferait intervenir s et K mais pas s' ; par ailleurs il est évident que ε_1 et ε_2 dépendent l'un de l'autre de s et de K de la même façon.

En revanche θ_t ne dépend que de ce qui est intervenu entre A et B ; comme les ε n'en dépendent pas, les trois termes du deuxième membre sont indépendants, ce qui permet d'écrire :

$$\overline{\theta_c^2} = \overline{\varepsilon_1^2} + \overline{\varepsilon_2^2} + \overline{\theta_t^2} = 2\overline{\varepsilon^2} + \overline{\theta_t^2}.$$

$\overline{\theta_i^2}$ est la variance de diffusion multiple relative à la cellule AB, elle vaut :

$$\overline{\theta_i^2} = \mathrm{K.AB} = \mathrm{K}(s' - s)$$

alors :

$$\overline{\theta_c^2} = 2\varepsilon^2 - \mathrm{K}s + \mathrm{K}s'.$$

En différenciant par rapport à s', la quantité gênante, $\overline{\varepsilon^2}$, s'élimine :

$$\frac{\partial \overline{\theta_c^2}}{\partial s'} = \mathrm{K}$$

puisque $\overline{\varepsilon^2}$ ne dépend pas de s'.

Ainsi la valeur quadratique moyenne des angles de diffusion multiple, mesurés entre cordes, n'est pas égale à celle des angles mesurés entre tangentes ; elle est plus petite du fait de l'assimilation de la trajectoire vraie, à une trajectoire rectifiée par les cordes.

Mais on voit qu'il est quand même possible d'estimer K, en étudiant la variation de la variance des angles entre cordes en fonction de la variation correspondante de la longueur de cellule de diffusion, à condition toutefois d'utiliser des cordes de longueurs toujours égales à s.

C'est pourquoi nous abandonnerons les tangentes pour faire systématiquement porter toutes nos mesures sur des petites cordes bien définies, limitant un arc de longueur s que nous poserons toujours très voisine de celle de la corde.

Pour calculer l'erreur commise sur K estimé de cette manière, il nous sera commode de connaître la valeur de $\overline{\varepsilon^2}$; on trouve dans Moyal (28) la valeur :

$$\overline{\varepsilon^2} = \frac{1}{3}\mathrm{K}s.$$

On prendra toujours s' multiple entier de s : $s' = ms$.
Alors il apparaît que la diffusion multiple mesurée entre cordes identiques distantes de m longueurs de cordes, vaut :

$$\overline{\theta^2}(ms) = \mathrm{K}_m s' = \mathrm{K}_m ms \quad \text{avec} \quad \frac{\mathrm{K}_m}{\mathrm{K}} = \frac{3m - 1}{3m}.$$

A titre indicatif, nous donnons les trois premières valeurs de K_m qui seules nous serviront au cours des calculs qui vont suivre :

$$\mathrm{K}_1 = \frac{2}{3}\mathrm{K} \qquad \mathrm{K}_2 = \frac{5}{6}\mathrm{K} \qquad \mathrm{K}_3 = \frac{8}{9}\mathrm{K}.$$

DEUXIÈME PARTIE

MESURE DE LA DIFFUSION MULTIPLE

Une bonne estimation de la diffusion multiple faite sur une trajectoire donnée, par exemple la trace laissée dans l'émulsion photographique par le passage d'une particule électrisée, exige des appareils de mesure la plus grande précision absolue compatible avec une précision relative raisonnable.

En effet, la statistique des angles observés sur une trace de longueur T sera d'autant plus riche que les mesures porteront sur des angles plus petits, puisque à un petit angle correspond une petite cellule et que le nombre d'angles indépendants mesurés est égal au nombre de cellules que l'on peut porter bout à bout le long de T. Il est donc préférable d'opérer à erreur absolue $\overline{\theta_0^2}$ petite plutôt qu'à erreur relative $\overline{\theta_0^2}/\overline{\theta^2}$ petite.

L'amélioration apportée par le choix des cordes plutôt que celui des tangentes provient de ce que l'on remplace une mesure d'angle par une mesure de coordonnées pour laquelle le microscope est mieux adapté. On s'efforcera toujours de travailler avec la plus petite erreur absolue sur la mesure des coordonnées, imposée par la limite du pouvoir séparateur de l'ensemble microscope-observateur.

Dans le but d'améliorer la qualité des pointés microscopiques, nous avons été conduit à modifier un peu les moyens d'observation actuellement en usage dans les différents laboratoires (8) (11).

Le principe de la nouvelle méthode repose sur la mesure de la diffusion de la trace projetée sur un plan vertical, perpendiculaire à l'émulsion ; les accidents de pente se traduisent alors par des variations d'altitude de la trace dans l'émulsion.

Ces variations en profondeur sont ensuite connues si l'on sait mesurer les variations correspondantes de la mise au point de l'appareil. Nous avons conçu, à cet effet, un dispositif dont la fidélité et la précision permettent, en une seule observation, de déterminer la cote d'un groupe de grains à sept centièmes de micron près par rapport à celle d'un groupe voisin de quelques microns du précédent (20).

LE DOCUMENT PHOTOGRAPHIQUE

L'émulsion de bromure d'argent photosensible dispersé dans la gélatine, appelée communément « émulsion nucléaire » constitue le milieu de choix pour fixer le phénomène fugitif que l'on veut ana-

lyser. La grande densité de l'émulsion (voisine de 4) alliée à la présence d'éléments de charge atomique élevée, tels que le brome et l'argent, lui confèrent les qualités requises par une observation confortable de la diffusion multiple.

Une particule électrisée traversant un tel milieu rend développable par les processus employés habituellement en photographie, une fraction appréciable du nombre des micro-cristaux de bromure d'argent qu'elle a rencontrés. Après avoir développé l'image latente et fixé la gélatine, il devient possible de restituer la trajectoire de la particule dans l'émulsion, en observant la succession des grains d'argent qui jalonnent ainsi son chemin initial. La reconstitution de l'évènement est d'autant plus aisée que le nombre de grains observables par unité de longueur de la trajectoire est plus grand et d'autant plus fidèle que leur diamètre moyen est petit. Le contraste jouera aussi son rôle dans la précision de la mesure des coordonnées d'un grain ; il est principalement affecté par la diffusion de la lumière par les grains erratiques. Leur présence est liée à l'apparition du voile chimique que l'on s'efforcera de rendre minimum en temporisant l'action du révélateur (12). C'est dans ce but que les laboratoires Ilford puis Kodak se sont efforcés de rendre stables des émulsions sensibles à grains fins et nombreux dans lesquelles le poids de bromure d'argent atteint environ cinq fois celui de la gélatine. Ces émulsions sont livrées sous la forme de plaques photographiques constituées par une pellicule sensible ayant une épaisseur généralement inférieure à 1 mm. collée sur une lame porte-objet, afin d'en faciliter l'observation microscopique.

Les plaques que nous avons employées ont les caractéristiques suivantes :

Ilford G5 200 μ . . .	2,5 × 5 cm.
Ilford G5 400 μ . . .	5 × 10 cm.

Après développement effectué au laboratoire (26) la trace laissée par le passage d'un électron relativiste apparaît comme un alignement de 30 à 35 grains environ par 100 μ, chaque grain ayant un diamètre moyen de 0,3 μ. Le « fond » est suffisamment clair pour qu'un grain sur 20, situé sur la trajectoire, soit en fait un grain aberrant.

Les détails de la préparation de ces émulsions sont tenus secrets par les constructeurs ; cependant quelques laboratoires ont déjà publié des recettes permettant d'obtenir un résultat analogue (10). En revanche, devant la nécessité pour le physicien de connaître la nature exacte du milieu traversé par la particule étudiée, le résultat de l'analyse chimique quantitative en a été largement répandu. A partir de ces données, nous pouvons calculer la constante k.

POUVOIR DIFFUSANT DE L'ÉMULSION

Connaissant la composition de l'émulsion, on forme la quantité figurant sous le signe somme dans l'expression qui donne la constante k (p. 11), on trouve : $k = 75{,}607$. Ainsi, pour une longueur de la cellule, s, exprimée en centimètres, l'angle quadratique moyen, exprimé en radians vaut :

$$\sqrt{\overline{\theta^2_{(s)}}} = \frac{8.695\sqrt{s}}{p\beta c}$$

la quantité $p\beta c$ ayant les dimensions d'une énergie est exprimée en MeV. Pour plus de commodité on exprime souvent s en microns, il faut alors diviser par un facteur 100 le deuxième membre de cette expression.

A titre d'exemple, indiquons qu'un électron ayant une énergie de 10 MeV est soumis dans l'émulsion à des déviations dont la valeur quadratique moyenne vaut environ 5° par 100 μ.

Avant toute discussion statistique de la méthode de la diffusion multiple. Il est indispensable de connaître la précision avec laquelle la constante de diffusion de l'émulsion est calculée, car la méthode est biaisée si cette constante est erronée.

1° Une première cause d'incertitude sur la valeur de k a pour origine le nombre limité de chiffres significatifs donnant la proportion de chacun des constituants de l'émulsion.

Le brome et l'argent qui jouent un rôle prépondérant en raison de leur charge atomique élevée et de leur grande abondance retiendront seuls notre attention. Il est alors raisonnable d'admettre que l'incertitude sur les proportions relatives introduit sur k une erreur de l'ordre de 2 o/o.

2° Moins importante est l'erreur provenant de l'incertitude ΔN sur le nombre des atomes présents N par centimètre cube d'émulsion au moment de la formation de l'image latente.

En particulier, la concentration en bromure d'argent, qui dépend de la densité de l'émulsion, varie avec la teneur en eau, Q, de la gélatine. En première approximation on trouve que l'on a, dans nos conditions expérimentales :

$$\frac{\Delta N}{N} = \frac{\Delta Q}{Q} = 1{,}7 \text{ o/o}.$$

3° Enfin il faut remarquer que si l'énergie au repos de l'électron est bien connue le rayon classique de l'électron, en revanche, n'est connu qu'à 1 o/o près.

Comme cette grandeur intervient dans l'expression de k, nous devons tenir compte de l'imprécision sur sa mesure pour estimer le biais de notre méthode.

Ces trois causes indépendantes d'erreurs différentes ont des effets qui s'ajoutent, elles entachent la valeur de k d'une erreur de 5 o/o. Nous adopterons pour $\sqrt{\overline{\theta^2_{(s)}}}$ la valeur :

$$\sqrt{\overline{\theta^2_{(s)}}} = \frac{49,82}{p\beta c} \text{ degrés par (MeV)}^{-1} \text{ pour } 100\ \mu.$$

CONTRACTION DE L'ÉMULSION

Après le développement, on fixe la plaque pour la rendre transparente et inerte en éliminant le bromure d'argent qui n'a pas été développé. Celui-ci passe en solution dans le bain de fixage et son départ laisse un vide dans l'émulsion qui est ensuite peu à peu comblé par la gélatine environnante. L'émulsion diminue alors de volume et comme elle ne dispose que d'un seul degré de liberté, elle s'affaisse.

Ainsi, après le séchage, on constate une contraction de l'émulsion qui a pour effet de réduire toutes les longueurs comptées sur un axe perpendiculaire au support de verre, le facteur de contraction, C, étant généralement compris entre 2 et 3. Il en résulte une diminution apparente de la diffusion multiple de la trajectoire projetée sur un plan perpendiculaire à la plaque. Chaque déviation mesurée dans ces conditions doit alors être multipliée par le facteur de contraction pour exprimer la valeur de la déviation initiale. Il en sera de même de la moyenne de ces valeurs et l'on devra utiliser dans ce cas une constante de diffusion égale à k/C.

Pour mesurer le coefficient de contraction d'une plaque, on pose connue *a priori* l'épaisseur initiale de l'émulsion. Par exemple, on prendra la valeur donnée par le constructeur : nous avons vérifié, sur des plaques sacrifiées, que cette valeur est exacte à 2 o/o près, si l'on fait une moyenne des résultats des mesures faites en différents points de la surface de la plaque. Connaissant ainsi l'épaisseur initiale, on déduit C de la valeur de l'épaisseur finale, obtenue sans difficultés à l'aide d'un microscope d'observation, avec une précision de 1 o/o.

Cette dernière opération est faite un peu avant de procéder aux mesures de diffusion, ceci dans le but de ne pas avoir à tenir compte des variations du degré hygrométrique ambiant.

LES DÉFORMATIONS DE LA GÉLATINE

Au cours de son séjour dans les différents bains photographiques, l'émulsion passe successivement par plusieurs états gonflés puis contractés suivant les valeurs du pH et de la concentration ionique

des milieux qui l'entourent ; et, si soigneuses que soient les manipulations, la plaque une fois séchée accuse toujours un certain « taux de déformation » (4).

Ces déformations se traduisent le plus souvent par des glissements et des rotations de feuillets de gélatine les uns par rapport aux autres, dans le plan de la plaque.

Il est facile de constater ce fait en comparant les déformations apparentes des trajectoires longues à celles des trajectoires courtes ; les premières sont presque rectilignes, tandis que les secondes, fortement inclinées, sont très courbées.

Lorsque le développement a été bien conduit, le fluage résiduel de la gélatine a principalement pour origine les tensions internes qui subsistent dans l'émulsion depuis son coulage. La gélatine profite alors de l'effet ramollissant de la première immersion pour prendre une figure d'équilibre, mais comme à ce moment l'image latente a déjà été enregistrée, elle est entraînée par les déplacements de gélatine et déformée.

Ces glissements dans le plan de l'émulsion peuvent atteindre une amplitude très grande car ils intéressent de larges plages limitées par le contour de la plaque. Ainsi, en examinant certaines plaques parmi les plus défectueuses, nous avons constaté, par exemple, la présence de glissements de plus de 100 μ accompagnés de rotations voisines de 90°. En revanche, de tels déplacements n'ont jamais été observés dans un plan perpendiculaire à celui de l'émulsion. Il est d'ailleurs intuitif de penser qu'à l'intérieur de cette pellicule, le réarrangement de la gélatine ne saurait affecter aussi gravement les distances relatives de deux événements par rapport à sa surface. En particulier, on peut affirmer, comme évident, que l'on n'observera jamais de déplacements, dans le sens de l'épaisseur, supérieurs à l'épaisseur de l'émulsion elle-même.

EXAMEN DE LA TRAJECTOIRE

Nous avons vu qu'il est possible de relier la déviation quadratique moyenne mesurée entre tangentes à la quantité équivalente mesurée entre cordes. Nous sommes donc ramené au problème de la mesure des pentes des petites cordes successives qui joignent des points régulièrement espacés appartenant à la trajectoire.

C'est dans ce but que nous nous sommes efforcé de rechercher quelles sont les conditions les plus favorables à la mesure précise des coordonnées d'un grain ou d'un paquet de grains de la trace, vus au microscope.

Il est un procédé qui jouit actuellement d'une grande faveur auprès des expérimentateurs (5) (29) (31) et qui consiste à mesurer,

à l'aide d'un micromètre oculaire, les déplacements « latéraux » de la trajectoire par rapport à un axe fixe, choisi le plus souvent parallèle à la direction moyenne de la trace, soit notre axe XX'. Nous appellerons déplacements latéraux, par exemple, les déplacements de la trace que l'on observe dans le champ du microscope lorsqu'on imprime à la plaque un mouvement de translation parallèle à XX'. Comme la trace est le plus souvent faiblement inclinée dans l'émulsion, on confond l'axe XX' avec sa projection sur le plan de l'émulsion, de sorte que le mouvement de translation demandé est celui du chariot mobile de la platine du microscope. L'approximation ainsi faite introduit une erreur systématique sur la mesure des pentes mais n'affecte sensiblement pas les variations de pentes qui sont proportionnelles aux θ_i cherchés.

Ces déplacements latéraux définissent la diffusion multiple apparente de la projection de la trajectoire sur un plan parallèle à celui de l'émulsion. En vertu des propriétés projectives que nous avons établies, la mesure de ces déplacements permet la détermination de K.

Il nous a paru intéressant de pouvoir compléter, le cas échéant, une série de mesures des déplacements latéraux par une série équivalente de mesures des déplacements verticaux, ceux-ci étant indépendants des premiers nous pouvons composer les deux valeurs quadratiques moyennes obtenues pour avoir une meilleure estimation du paramètre cherché. Leurs valeurs sont liées aux variations d'altitude de la trace dans l'épaisseur de l'émulsion.

Si nous appelons z_i les cotes des points de la trace d'abscisses respectives, x_i, comptées sur l'axe XX', la détermination d'un angle de diffusion multiple exige, dans le cas général, la mesure de quatre valeurs de z_i en quatre points d'abscisses x_i différentes. Sa grandeur est donnée par la combinaison linéaire évidente, à l'approximation des petits angles près :

$$\theta_i = \frac{z_4 - z_3}{x_4 - x_3} - \frac{z_2 - z_1}{x_2 - x_1}.$$

Comme on choisit les x_i multiples de la cellule d'angle, s, θ_i prend la forme :

$$\theta_i = \frac{1}{s}(z_4 - z_3 - z_2 + z_1).$$

CHOIX DU PLAN DE PROJECTION

Outre l'avantage de l'enrichissement statistique apporté par la mesure de la diffusion multiple projetée sur un plan vertical, cette manière de procéder nous a semblé préférable à la mesure des déplacements latéraux, tant par la qualité des mesures des pentes

individuelles que par la rapidité de ces mesures, et les arguments que nous allons maintenant exposer tendent à justifier l'emploi exclusif que nous avons fait de la méthode dite « verticale ».

1) La mesure d'un déplacement latéral, y, exige, entre autres choses, pour être précise, une bonne mise au point du microscope sur le tronçon étudié ; il est donc plus rapide de se limiter à la mesure des z plutôt qu'à celle des y, surtout si l'on dispose d'une lecture commode de la position de mise au point.

2) Le repérage de la mise au point est défini par les positions relatives de l'objectif et de l'émulsion. Une grande variété de techniques différentes peuvent être mises à contribution pour estimer avec la sensibilité que l'on désire le déplacement des organes mobiles par rapport au statif du microscope. Parmi celles-ci nous en avons choisi une qui fait intervenir les variations du coefficient d'influence électrostatique de deux conducteurs portés par les parties fixes et mobiles respectivement. Ainsi est annulé le « temps mort » qui est si préjudiciable à la qualité des indications données par les micromètres à tambour. Il en résulte que l'on peut affiner la mise au point par simple tâtonnement.

3) En procédant de cette façon, la mesure de la cote, z d'un paquet de grains situé dans le champ du microscope ne nécessite l'emploi d'aucun dispositif de mesure adjoint à l'oculaire. Cette circonstance est favorable à une bonne exploitation des qualités optiques du microscope, particulièrement dans le cas de la vision binoculaire pour lequel l'usage d'une échelle micrométrique augmente l'aberration de sphéricité, apporte un défaut de parallaxe et rend les deux images non superposables. En outre, il est bon qu'au cours d'une mesure de longueur faite au dixième de micron près, l'opérateur n'ait de contact avec l'appareil qu'en des points de grande rigidité, tels que la vis de focalisation qui, par surcroît, commande le mouvement le plus mécaniquement précis du microscope.

4) L'étalonnage de l'appareil de contrôle de la mise au point est une opération qui peut se faire simplement et d'une manière absolue en utilisant les interférences lumineuses. On les observe, par exemple, en substituant à l'objectif un micro-interféromètre à onde simple accouplé à un petit écran monochromatique à ondes multiples.

5) Le même dispositif permettrait de mettre en évidence les déplacements verticaux accidentels de la platine qui seuls affectent la mesure des z. Sans pousser si loin la précision de ce contrôle, nous nous sommes contenté de faire défiler sous l'objectif la face optiquement plane d'une lame de verre taillée posée sur la platine. Le plan défini par cette surface est matérialisé par un léger dépôt de grains d'argent colloïdal obtenu par évaporation de « collargol » pharmaceutique. Les variations de mise au point qui apparaissent au cours

de l'exploration de cette surface signalent les irrégularités du mouvement de la platine.

Grâce à ce contrôle rapide de la platine, il est possible de sélectionner parmi plusieurs platines interchangeables les meilleures du point de vue de la mesure des z, et, sur la platine que nous avons retenue, on a délimité l'intervalle de course du chariot donnant la meilleure translation.

Ainsi, le problème difficile du contrôle direct de l'influence des irrégularités de la translation sur la mesure des y est simplifié si l'on se limite à celle des z.

6) Après avoir contrôlé et sélectionné la platine, les défauts de translation qui subsistent peuvent être presque complètement éliminés en interdisant tout petit mouvement vertical accidentel de la plaque pendant la translation dans son plan. A cet effet, on impose à la plaque de rester constamment en contact avec le petit élément de plan de référence défini par la face supérieure de la lentille frontale du condenseur ; on utilise pour cela un condenseur à immersion d'huile et on dérègle légèrement sa position à l'aide d'une cale, pour qu'il affleure de quelques microns au-dessus de la surface de la platine. Dans ces conditions, la plaque est constamment portée par le condenseur qui est fixe et sur lequel elle glisse à frottement gras ; elle est entraînée par le chariot mobile qui la retient sur lui grâce à la tension superficielle d'une goutte supplémentaire d'huile du condenseur, glissée entre la plaque et le chariot.

7) Lorsqu'on veut déterminer la position d'un objet situé dans le plan-objet du microscope, la précision du pointé est proportionnelle à l'ouverture numérique de la combinaison optique utilisée tandis qu'elle est proportionnelle au carré de cette ouverture lorsqu'il s'agit de déterminer l'altitude de l'objet vu dans le même microscope (2). Les pointés en profondeur seront donc meilleurs que les pointés latéraux si l'on utilise pour l'observation un objectif ayant une ouverture numérique supérieure à un. Dans cet ordre d'idées, nous avons examiné toutes les combinaisons mises à notre disposition par la maison Leitz. L'objectif semi-apochromatique, avec lentille de fluorine, d'ouverture 1,30 et de grossissement 70 (Fluri), associé à la paire d'oculaires compensés de puissance 8 (Périplan 8X) nous a paru constituer la meilleure combinaison : la marge de travail est de 300 μ ; le diamètre pupillaire est de l'ordre de 0,3 mm.

LE MICROSCOPE

1) La première qualité exigée de l'appareil d'observation est la stabilité du statif qui assure la fidélité et la reproductibilité des mouvements. Nous avons successivement essayé différents modèles

de microscopes appartenant aux marques suivantes : BBT, Cooke, Koritzka, Leitz, Meopta, Reichert, Spencer, Stiassnie, Zeiss.

Nous avons retenu le modèle « Ortholux » construit par la firme Leitz, particulièrement commode à cause du statif inversé qui permet une manipulation aisée de la plaque sous l'objectif, au moment de l'orientation de la trace à étudier. Le chariot mobile, monté sur rouleaux, assure la meilleure translation horizontale qu'il nous ait été donné d'observer, sans être sujet aux avaries habituelles des chariots montés sur billes ou sur glissières, occasionnées par l'usure et l'encrassement.

Dans ce modèle, l'ensemble objectif-corps binoculaire est fixe et solidaire du bâti, tandis que l'ensemble platine-condenseur est mobile ; cette présentation favorise l'adjonction de dispositifs de mesures des petits mouvements de mise au point. Cependant, comme toujours la totalité de l'ouverture numérique du condenseur n'est utilisée en entier que pour une seule position de la mise au point. Nous avons pu vérifier que cet effet ne modifie pas sensiblement la latitude de mise au point sur des objets éloignés de quelques centaines de microns de la position privilégiée.

Enfin le centrage automatique des diaphragmes de champs et d'ouverture interdit les « glissements » de l'image pendant la recherche de la mise au point, qui fausseraient les mesures des déplacements latéraux et rendraient moins précises celles des déplacements verticaux de la trajectoire.

2) La détermination précise de l'emplacement d'un objet vu dans le champ du microscope nécessite l'usage d'une bonne combinaison optique présentant le minimum de distorsion et de courbure de champ, tout en donnant une image suffisamment « piquée » de l'objet. La question du grandissement n'est que de peu d'importance tant que la latitude d'accommodation visuelle reste petite. Nous avons le plus souvent opéré avec des facteurs de grandissement de l'ordre de 500, imposés par les combinaisons que nous avions choisies.

Les distorsions dites en « tonneau » ou en « hyperboles » faussent les mesures des y tandis que les défauts de planétisme affectent la mesure des z. Nous avons réduit l'influence de ces aberrations sur la mesure des coordonnées en nous imposant de n'utiliser qu'une région restreinte du champ oculaire, par exemple la zone avoisinant l'axe optique. Cette restriction est peu incommodante dans le cas où l'on mesure les déplacements verticaux car il est alors permis, au cours d'une série de mesures d'angles, de faire glisser la plaque dans le plan de platine afin de ramener la trace au voisinage du centre du champ, sans pour cela modifier les valeurs des pentes de la trace projetée sur un plan vertical.

Le contraste et la finesse de l'image sont assurés en partie par l'achromatisme du système optique. Nous avons préféré nous libérer

de cette exigence en opérant toujours avec de la lumière presque monochromatique. Un filtre interférentiel, interposé entre la source d'éclairage et le condenseur, en un point où les rayons lumineux sont parallèles, nous a donné entière satisfaction. La bande passante, large de 200 angströms, assure un monochromatisme suffisant pour supprimer tout halo chromatique autour des grains. Elle est située dans la région verte sensible de l'œil, elle est assez large pour ne pas introduire de phénomènes d'interférences parasites entre les différentes surfaces optiques du microscope.

Il n'a pas été nécessaire de modifier la source de lumière, l'intensité transmise par le filtre permettant une bonne observation des grains dans la plaque.

MESURE ET ÉTALONNAGE DE LA MISE AU POINT

1) L'un des principaux avantages techniques de la méthode dite verticale est la possibilité de mesurer, sans introduire d'erreurs appréciables, la quantité dont il a fallu déplacer la plaque pour amener successivement dans le plan-objet du microscope deux tronçons séparés appartenant à la trace.

Il semblait, en effet, tout indiqué de chercher la solution à ce problème parmi les méthodes de mesure des longueurs employées en métrologie, qui atteignent couramment des précisions très supérieures à celles d'un pointé microscopique qui est limité par la valeur finie du pouvoir séparateur de l'objectif.

C'est dans ce but que nous avons adjoint au microscope un condensateur électrique de formes géométriques simples, ayant une capacité variable, fonction de la position de l'objectif par rapport au plan de l'émulsion. Afin d'éviter toute transmission mécanique des mouvements verticaux de la platine au condensateur, une portion de la platine elle-même joue le rôle de l'armature mobile du condensateur, tandis que l'armature fixe, électriquement isolée du microscope, est solidaire du statif. Le condensateur variable ainsi constitué est protégé contre les influences apportées par l'opérateur, par un carter conducteur, relié à la masse, qui fait fonction d'écran électrostatique.

Pour mesurer les variations de la capacité, consécutives aux variations de la mise au point, nous avons associé au condensateur une bobine fixe, de telle manière que l'ensemble constitue un circuit oscillant ayant une fréquence voisine de 100 mégacycles. Les oscillations sont entretenues dans le circuit grâce à une lampe triode qui lui est accouplée. Les écarts de fréquence du circuit par rapport à une fréquence de référence fixe, donnée par un quartz piézo-électrique, sont mis en évidence par la méthode des battements. La fréquence des battements est mesurée par un fréquencemètre à lecture directe spé-

cialement construit pour cet usage, dont les indications sont lues sur un galvanomètre.

2) L'étalonnage de la courbe de réponse du galvanomètre est obtenu en faisant apparaître dans le champ du microscope des franges d'interférences entre deux rayons lumineux dont les différences de marches sont proportionnelles aux distances relatives de la platine mobile à l'objectif fixe.

Pour voir les franges, on pose sur la platine une lentille plan-convexe dont le rayon de courbure est égal à 20 cm., la face plane servant d'assise. A l'aide d'un objectif de grossissement moyen (× 20) et de faible ouverture on examine le point haut de la face convexe de la lentille. Entre cette face et l'objectif d'observation, on introduit un deuxième objectif, à optique simple et de faible convergence (grossissement : × 3,5) dont la face frontale plane est en regard de la face bombée de la lentille. Pour rendre la manipulation plus aisée, on a fixé rigidement le deuxième objectif au premier, les axes optiques étant confondus (fig. 4).

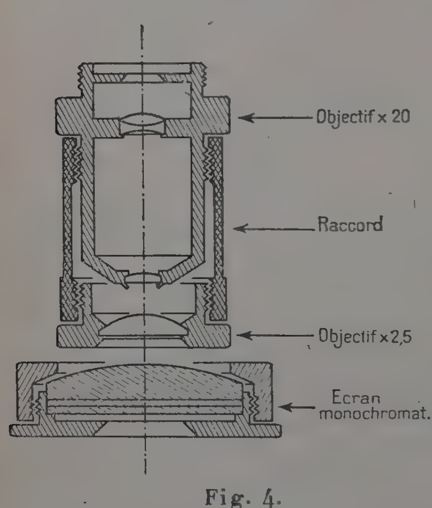


Fig. 4.

Lorsque la face plane de l'objectif est au contact de la calotte de la lentille, on est en présence d'un dispositif propre à donner les anneaux de Newton. Ceux-ci localisés à la surface de l'objectif intermédiaire, sont vus à travers lui par l'objectif principal qui en donneune image nette dans le plan oculaire.

L'interféromètre ainsi constitué est éclairé par transparence à l'aide de la source normalement adjointe au microscope. Pour accroître le nombre d'anneaux observés, la lumière est doublement filtrée par deux étalons interférentiels, sélectionnés pour que leurs bandes passantes se recoupent; la longueur d'onde de la lumière restante a été déterminée au spectroscope par comparaison avec quatre raies de l'arc au mercure : le centre de gravité de la bande est situé à 5 203 ± 10 angströms.

Par ailleurs on s'est efforcé de rendre le contraste maximum en déposant par projection thermique sur les deux surfaces de l'interféromètre, une couche semi-transparente d'aluminium aluminé.

Dans ces conditions, 20 franges consécutives peuvent être aisément dénombrées lorsqu'on écarte progressivement la platine de l'objectif de 6 μ environ en agissant sur la vis de mise à point du microscope. Chaque fois que le système d'anneaux est à centre brillant, on note la valeur lue sur le galvanomètre. Les résultats permettent de construire point par point la courbe d'étalonnage.

CONDUITE D'UNE MESURE

La trace que l'on veut analyser ayant été repérée au cours du dépouillement de la plaque, on la désigne par un point d'encre déposé sur une pellicule transparente de matière plastique qui recouvre l'émulsion. Cette pellicule d'une épaisseur égale à une dizaine de microns est suffisamment imperméable pour jouer le rôle d'écran protecteur de la gélatine contre l'humidité apportée par l'encre. Pour l'obtenir, on soumet la plaque à une pulvérisation de « Plastic-Coat » après que le dépouillement général en ait été fait et lorsque l'on décide d'entreprendre les mesures.

Lorsque celles-ci sont terminées, on ôte la pellicule en immergeant la plaque dans le benzène ; les points d'encre sont alors effacés et la plaque est de nouveau disponible pour une nouvelle recherche.

Pour effectuer une mesure de la diffusion multiple, la trace est amenée sous l'objectif du microscope de mesure et orientée de telle manière qu'en agissant sur la molette qui commande la translation de la platine, on puisse la faire défiler tout entière dans le champ oculaire. Sa direction moyenne est alors sensiblement parallèle à la translation de la platine. Notons que ce parallélisme n'a pas besoin d'être rigoureux puisqu'un défaut d'orientation de la trace ne modifiera pas les cotes respectives des grains dont elle est formée.

On fixe ensuite l'orientation de la plaque en la maintenant collée sur la platine par une goutte d'huile de cèdre.

On procède alors à l'examen attentif de la trace en la faisant avancer pas à pas de la longueur constante *s*, après chaque pointé. On s'aide pour cela de repères logés dans l'oculaire qui permettent de définir *s* à un micron près.

Le choix de *s* résulte d'un compromis entre une certaine valeur optima que nous définirons tout à l'heure et celle qui donne des lectures de profondeur dans une bonne région de travail du galvanomètre. Le plus souvent, nous avons adopté des valeurs voisines de 50 μ qui correspondaient à des fractions simples du diamètre du champ.

Après chaque pointé, on rejette le spot du galvanomètre dans une région de l'échelle voisine de zéro en agissant sur le tambour de mise au point ; la trace est alors devenue floue et on la remet approximati-

vement au point en agissant sur la crémaillère de la platine, ce qui ne modifie pas la valeur indiquée par le galvanomètre. On parfait la mise au point à l'aide du mouvement fin, et lorsque l'opération est jugée terminée, on note la nouvelle valeur lue sur le galvanomètre qui joue le rôle de zéro arbitraire relatif à la mesure de cote qui va suivre.

La platine est ensuite avancée d'une longueur de cellule, ce qui fait apparaître au centre du champ un nouveau paquet de grains situé à s microns du précédent.

La dernière position de la mise au point que nous avions choisie n'est évidemment plus valable pour ce nouveau tronçon ; on la retouche de manière à obtenir une image nette des grains, et la nouvelle valeur lue sur le galvanomètre est notée. Par différence avec la précédente, on déduit, au facteur s près, la pente de la petite corde de longueur s.

On répète l'opération autant de fois qu'il est nécessaire pour avoir le nombre d'angles indépendants désirés ou bien autant de fois que a longueur totale de la trace observable le permet.

ESTIMATION DE L'ANGLE QUADRATIQUE MOYEN

Une fois que l'examen de la trace est achevé et les valeurs des cotes enregistrées, on procède au calcul des pentes de toutes les petites cordes distantes les unes des autres de s microns et interceptant chacune un arc de longueur s de la trajectoire. On utilise pour cela la courbe de calibrage du galvanomètre sur laquelle on lit directement les valeurs des différences, en microns, de deux cotes consécutives, grâce à un ensemble convenablement choisi de règles graduées coulissantes.

On dispose ainsi de n valeurs des pentes de petites cordes consécutives, soit :

$$\alpha_1, \alpha_2, \ldots, \alpha_i, \ldots, \alpha_n.$$

Un angle de diffusion multiple est donné par la différence de deux de ces pentes. Par exemple, la déviation après un parcours de longueur ms dans l'émulsion est :

$$\theta_i(ms) = \alpha_{i+m} - \alpha_i.$$

En formant toutes les combinaisons deux à deux avec tous les α_i disponibles, on obtiendrait $\frac{n(n-1)}{2}$ angles différents de diffusion multiple, fonctionnellement indépendants mais statistiquement liés.

En fait, les différentes valeurs des θ_i ainsi obtenues sont affectées d'une erreur qui dépend de la précision sur la mesure des pentes.

Appelons α_i' la valeur vraie de la $i^{\text{ème}}$ pente et α_i'' l'écart expérimental, alors :

$$\alpha_i = \alpha_i' + \alpha_i''$$

et :

$$\alpha_{(i+m)} = \alpha'_{(i+m)} + \alpha''_{(i+m)}$$

la même distinction s'applique à la quantité calculée $\theta_i(ms)$:

$$\theta_i(ms) = \alpha'_{i+m} - \alpha'_i + \alpha''_{i+m} - \alpha''_i = \theta'_i(ms) + \theta''_i(ms).$$

Formons la valeur quadratique moyenne de cette expression, on trouve :

$$\overline{\theta^2_{(ms)}} = \overline{\theta'^2_{(ms)}} + \overline{\theta^2_0} \qquad \text{avec} \qquad \overline{\theta^2_0} = 4\overline{\varepsilon^2_0}/s^2.$$

Ainsi la variance de diffusion multiple mesurée sur la base *ms* est égale à la somme de la variance de diffusion multiple pure et de la variance d'erreur.

Cette dernière est indépendante de la base choisie et comme nous avons vu précédemment que :

$$\text{E}[(\overline{\theta'^2}ms)] = \text{K}ms - \overline{\varepsilon^2}$$

($\overline{\varepsilon^2}$ étant fonction de K et de s mais pas de m) alors on peut écrire :

$$\overline{\theta^2}(ms) = \text{K}ms + \overline{\theta^2_0} - \overline{\varepsilon^2} = \text{A}m + \text{B}.$$

Ainsi pour une trace donnée, la variance de diffusion observée croît linéairement avec m. Les valeurs de $\overline{\theta^2}(ms)$ correspondant à différentes valeurs de m s'obtiennent à partir du tableau des α_i en formant les combinaisons :

$$(m = 1) \qquad \overline{\theta^2}(s) = \frac{1}{n-1}\sum_1^n(\alpha_{i+1} - \alpha_i)^2$$

$$(m = 2) \qquad \overline{\theta^2}(2s) = \frac{1}{n-2}\sum_1^n(\alpha_{i+2} - \alpha_i)^2, \text{ etc...}$$

Ces valeurs, au nombre de 5, sont portées sur un graphique défini par $\overline{\theta^2}(ms)$ en ordonnée et m en abscisse ; la pente de la droite la mieux adaptée aux points figuratifs donne une estimation non biaisée de la constante cherchée K.

Cette méthode, bien que rigoureuse, ne permet pas un calcul simple de l'erreur commise sur K. Comme pour toute mesure en physique corpusculaire, il est nécessaire d'allier la finesse de la méthode à la rapidité des calculs ; nous avons adopté un compromis entre la méthode brutale des moindres carrés non pondérée, insuffisante en regard de nos besoins, et une méthode idéale exhaustive qui nous aurait conduit, après un développement analytique exorbitant, à un mode opératoire trop compliqué.

Un raffinement substantiel est apporté par la discussion statistique détaillée du problème réduit au cas de trois estimations de la variable $\overline{\theta^2}(ms)$.

LE BRUIT DE FOND

L'ordonnée à l'origine de la droite tracée sur le diagramme donne la valeur de la diffusion mesurée sur une base nulle, sa valeur dépend de la quantité $\overline{\theta_0^2}$ qui s'apparente à un « bruit de fond » :

$$y(0) = s^2\overline{\theta_0^2} - \frac{1}{3}s^2\overline{\theta'^2}(s),$$

elle permet une mesure de l'erreur quadratique moyenne $\overline{\varepsilon_0^2}$, affectant chaque mesure de cotes individuelles, cette erreur comprend principalement :

l'imprécision des pointés due à la latitude d'accommodation,
les irrégularités du mouvement de la platine,
la dispersion des grains autour de la trajectoire vraie,
l'introduction des grains aberrants dans la statistique,
la fluctuation expérimentale sur la longueur de la cellule,
les déformations dues au glissement de la gélatine,
les variations locales du coefficient de contraction.

L'erreur moyenne $\overline{\varepsilon_0^2}$ mesurée sur différentes traces s'est montrée essentiellement variable d'une plaque à l'autre ou d'une trace à l'autre suivant qu'elle est plus ou moins plongeante.

Pour mettre en évidence cette dispersion de la valeur moyenne du bruit de fond, nous avons mesuré $\overline{\varepsilon_0^2}$ par la méthode de la droite la mieux adaptée, sur 35 cas de trajectoires enregistrées dans dix plaques différentes; la stastistique porte sur 5 000 angles environ.

La moyenne vaut $= 0{,}15\ \mu$
et la dispersion $= 0{,}05\ \mu$,
soit 0,3 fois la valeur moyenne environ. Ce résultat montre clairement qu'il est impossible d'élaborer une méthode de mesure de la diffusion multiple dans laquelle on supposerait constante la valeur quadratique moyenne du bruit de fond.

Il est intéressant de comparer la moyenne ainsi mesurée à l'erreur commise sur la cote d'un paquet de grains bien déterminé. Dans ce cas l'erreur provient uniquement de l'imprécision sur la mise au point. La cote d'un groupe de quatre grains a été mesurée 36 fois de suite; la distribution des valeurs observées est sensiblement gaussienne avec un écart type égal à :

$$\sqrt{\overline{\varepsilon_0^2}} = 0{,}07\ \mu \text{ (1)}$$

on voit que l'imprécision des pointés joue un rôle prépondérant dans la valeur du bruit de fond.

(1) Ce résultat est en accord avec la valeur trouvée par Vigneron (35).

TROISIÈME PARTIE

DISCUSSION STATISTIQUE D'UN RÉSULTAT DE MESURES

Les mesures des cotes ayant été faites et les différences premières calculées, nous avons vu comment, à partir du tableau des α_i, on obtient plusieurs estimations de la diffusion multiple, relatives à différentes grandeurs de la cellule de diffusion. Nous nous proposons maintenant de rechercher la composition de ces diverses estimations qui est la plus statistiquement favorable à la détermination de K.

Une telle discussion a pour point de départ l'étude des variances de ces estimations et des corrélations qui les relient, quantités que l'on sait calculer en utilisant les propriétés générales des espérances mathématiques. A partir de ces données, nous définissons la combinaison linéaire de trois de ces estimations qui donne la variance minima sur la constante cherchée K. On est ainsi conduit à choisir une pondération des estimations qui varie lentement avec la quantité λ, employée couramment en statistique, appelée « rapport signal/bruit de fond ». Nous proposons un moyen rapide pour estimer la valeur de λ relative à chaque série de mesures.

L'erreur statistique finale sur la quantité cherchée, $p\beta c$, est calculée et l'on discute les conditions expérimentales, en particulier le choix de la cellule s, qui rendent cette erreur minima.

LIAISONS APPORTÉES PAR LES CHEVAUCHEMENTS

Il est coutume de dire que deux angles de diffusion multiples se chevauchent, lorsque, pour les mesurer, on a utilisé deux cellules de diffusion qui recouvrent une portion commune de la trajectoire (fig. 5).

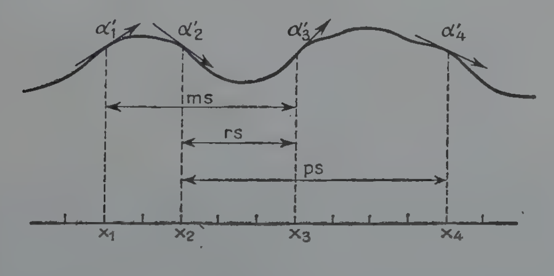


Fig. 5.

C'est par exemple le cas de deux angles consécutifs de la série $\theta_i(2s) = \alpha_{i+2} - \alpha_i$ qui nous a servi à calculer $\overline{\theta^2}(2s)$. C'est aussi le cas

de deux angles appartenant respectivement aux deux séries donnant $\overline{\theta^2}(3s)$ et $\overline{\theta^2}(s)$, à condition de les choisir avec les indices i et $3i$.

D'une manière générale, tout angle défini par :

$$\theta_i(ms) = \alpha_{i+m} - \alpha_i$$

chevauche avec :

$$\theta_j(ps) = \alpha_{j+p} - \alpha_j$$

si :

$$j - i < m.$$

L'étude des variances et des corrélations entre les trois quantités estimées $\overline{\theta^2}(s)$, $\overline{\theta^2}(2s)$, $\overline{\theta^2}(3s)$, obtenues à partir de la même série des α_i expérimentaux, implique la connaissance de la liaison élémentaire entre deux angles qui se chevauchent.

Nous traiterons le cas idéal pour lequel les α'_i représentent les valeurs exactes des pentes des tangentes à la trajectoire, prises aux points x_i.

Désignons par $\theta'_1 = \alpha'_3 - \alpha'_1$ l'angle que font deux tangentes à la trajectoire aux points d'abscisse x_1 et x_3, de même $\theta'_2 = \alpha'_4 - \alpha'_2$ celui de deux tangentes en x_2 et x_4.

Soit ms et ps les longueurs des bases de diffusion de ces deux angles, et rs la longueur de la partie commune, si elles se chevauchent, alors :

$$x_3 - x_1 = ms \qquad x_4 - x_2 = ps \qquad x_3 - x_2 = rs.$$

Dans le cas où les deux bases n'empiètent pas l'une sur l'autre, les deux angles θ'_1 et θ'_2 sont évidemment indépendants puisque aucune déviation élémentaire ne peut apporter une contribution commune aux deux angles de diffusion multiple mesurés.

Au contraire si les deux angles se chevauchent, tout accident survenu dans le tronçon commun modifie de la même façon ces deux angles. On conçoit bien que ces angles soient alors liés.

Comme au cours des calculs qui vont suivre nous raisonnerons toujours sur les variances, nous aurons besoin de connaître la liaison entre les carrés de ces deux angles ; c'est pourquoi nous avons calculé l'espérance mathématique du produit de ces deux quantités, on trouve :

$$\mathrm{E}[\theta_i'^2(ms) \times \theta_j^{2'}(ps)] = \mathrm{K}^2 s^2 (2r^2 + mp)$$

de même :

$$\mathrm{E}[\theta'_i(ms) \times \theta'_j(ps)] = \mathrm{K}rs.$$

Si au lieu de raisonner sur les tangentes à la trace aux points x_i on opère sur des petites cordes, il apparaît deux effets qui se contrarient :

1) Les produits partiels que nous avons considérés sont alors constitués chacun par deux termes qui ne sont plus tout à fait indépendants, et la liaison aura pour effet d'augmenter un peu l'espérance mathématique du produit ;

2) La constante K qui nous a servi à calculer cette espérance est relative aux angles que font les tangentes entre elles. Nous avons vu qu'elle est un peu trop forte dans le cas des cordes. Pour cette raison, l'espérance du produit des angles entre cordes est un peu plus petite que celle que nous venons de calculer.

Nous admettrons que l'effet résultant est négligeable et comme cette espérance n'interviendra que dans le calcul des poids, cette approximation n'introduira pas de biais sur l'estimation finale de K.

FLUCTUATION DE LA VARIANCE DE DIFFUSION PURE

Considérons une estimation $\overline{\theta'^2}(ms)$ de la variance de diffusion pure mesurée idéalement, sans erreurs, sur des bases de diffusions égales à *ms*.

En raison du nombre fini de valeurs α'_i qui ont servi à établir cette moyenne, celle-ci est sujette à des fluctuations statistiques, indépendamment de toute erreur de mesure. Nous avons calculé la variance sur cette estimation.

En appliquant le théorème de Kœnig, on trouve :

$$\sigma'^2[\overline{\theta'^2}(s)] = \frac{2K^2s^2}{n}$$

$$\sigma'^2[\overline{\theta'^2}(2s)] = \frac{12K^2s^2}{n}$$

$$\sigma'^2[\overline{\theta'^2}(3s)] = \frac{38K^2s^2}{n}$$

valeurs obtenues en supposant n assez grand pour que l'on puisse considérer $n - 1$ et $n - 2$ peu différents de n.

Si les angles sont mesurés entre petites cordes, la marche du calcul est inchangée et il suffit de remplacer dans les trois expressions de σ'^2, la valeur de la constante K relative aux tangentes par ses valeurs relatives aux cordes (p. 13) soit :

$$\sigma_1'^2 = \frac{4}{9}\,\frac{2K^2s^2}{n}$$

$$\sigma_2'^2 = \frac{25}{36}\,\frac{12K^2s^2}{n}$$

$$\sigma_3'^2 = \frac{64}{81}\,\frac{38K^2s^2}{n}.$$

VARIANCE SUR UNE MESURE ENTACHÉE D'ERREUR

On simplifiera l'écriture en supprimant l'indice *ms* relatif aux θ'_i et aux θ''_i et, comme toujours, les variables « primes » sont réservées aux quantités vraies et les variables « secondes » désignent les erreurs affectant les premières.

Il apparaît que la grandeur observée résulte de la somme de trois quantités qui sont :

1° la diffusion multiple pure ;

2° l'erreur moyenne ;

3° deux fois la moyenne du produit diffusion-erreur.

On peut montrer que ces trois termes sont indépendants, alors la variance totale est égale à la somme des variances des constituants. Compte tenu de ce que nous travaillons entre cordes, il vient :

$$\sigma_1^2 = \frac{2}{n}\left[\frac{4}{9}\,K^2s^2 + \frac{3}{2}\,(\overline{\theta_0^2})^2 + \frac{4}{3}\,Ks\,.\,\overline{\theta_0^2}\right]$$
$$\sigma_2^2 = \frac{2}{n}\left[\frac{25}{6}\,K^2s^2 + \frac{3}{2}\,(\overline{\theta_0^2})^2 + \frac{10}{3}\,Ks\,.\,\overline{\theta_0^2}\right]$$
$$\sigma_3^2 = \frac{2}{n}\left[\frac{1\,216}{81}\,K^2s^2 + \frac{3}{2}\,(\overline{\theta_0^2})^2 + \frac{16}{3}\,Ks\,.\,\overline{\theta_0^2}\right]$$

CORRÉLATIONS ENTRE LES DIVERSES ESTIMATIONS

Examinons tout d'abord le cas d'angles mesurés entre tangentes et sans erreur. On veut connaître la liaison entre les trois estimations de $\theta_1'^2$, $\theta_2'^2$, $\theta_3'^2$, obtenues à partir du même tableau des α_i'.

Pour cela introduisons les trois coefficients de corrélation correspondants, soit ρ_{12}', ρ_{23}', ρ_{31}' ; par définition ils ont pour expression :

$$\rho_{12}' = \frac{E[(\overline{\theta_{(s)}'^2} - Ks)(\overline{\theta_{(2s)}'^2} - 2Ks)]}{\sigma'[\overline{\theta_{(s)}'^2}] \times \sigma'[\overline{\theta_{(2s)}'^2}]}$$

et deux autres formules analogues pour ρ_{23}' et ρ_{31}'.

Il est inutile de calculer les ρ', car au cours des développements qui vont suivre, on se servira toujours des covariances qui valent $\rho'\sigma_m'\sigma_p'$.

Pour calculer l'espérance qui figure au numérateur, développons les produits entre crochets. Il apparaît les espérances partielles de la forme déjà vue (p. 470) :

$$E[\theta_j'^2(ms) \times \theta_k'^2(ps)]$$

que nous savons calculer. On trouve ainsi les valeurs :

$$\rho_{12}'\sigma_1'\sigma_2' = \frac{4}{n}\,K^2s^2$$
$$\rho_{23}'\sigma_2'\sigma_3' = \frac{20}{n}\,K^2s^2$$
$$\rho_{31}'\sigma_3'\sigma_1' = \frac{6}{n}\,K^2s^2.$$

Si au lieu d'opérer entre tangentes, on considère les angles mesurés entre petites cordes, on est amené à réduire dans des rapports sensiblement égaux, les numérateurs et les dénominateurs des ρ'.

En effet, l'intervention consiste à remplacer K par K_1, K_2, K_3, à la fois dans les espérances et dans les variances, quantités qui dépendent, les unes et les autres, d'une manière très voisine de K.

Il est donc raisonnable de poser l'approximation que les corrélations n'ont pas varié.

Alors, d'une manière générale, on peut écrire :

$$[\rho'_{mp}\sigma'_m\sigma'_p]_{\text{cordes}} = [\rho'_{mp}\sigma'_m\sigma'_p]_{\text{tangentes}} \times \frac{[\sigma'_m \cdot \sigma'_p]_{\text{cordes}}}{[\sigma'_m \cdot \sigma'_p]_{\text{tangentes}}}.$$

Or, nous avons vu que les σ'_m sont proportionnels aux K_m, d'où les valeurs des covariances des angles entre cordes :

$$\rho'_{12}\sigma'_1\sigma'_2 = \frac{4K^2s^2}{n} \times \frac{K_1K_2}{K^2} = \frac{10}{9}\,\frac{2K^2s^2}{n}$$

$$\rho'_{23}\sigma'_2\sigma'_3 = \frac{20K^2s^2}{n} \times \frac{K_2K_3}{K^2} = \frac{200}{27}\,\frac{2K^2s^2}{n}$$

$$\rho'_{31}\sigma'_3\sigma'_1 = \frac{6K^2s^2}{n} \times \frac{K_3K_1}{K^2} = \frac{16}{9}\,\frac{2K^2s^2}{n}$$

Considérons maintenant le cas réel (cordes ou tangentes) où chaque θ'_i est affecté d'une erreur expérimentale θ''_i définie par sa variance $\overline{\theta_0^2}$.

Dans ces conditions, on se rappelle que les estimations des moyennes s'écrivent :

$$\overline{\theta^2_{(s)}} = \overline{\theta'^2_{(s)}} + \overline{\theta''^2_{(s)}} + \overline{2\theta'_{(s)}\theta''_{(s)}}, \text{ etc.}$$

Alors les espérances que nous devons calculer pour connaître les liaisons entre ces trois estimations prennent les formes nouvelles :

$$E\left\{\left[\overline{\theta'^2_{(s)}} - E[\overline{\theta'^2_{(s)}}] + \overline{\theta''^2_{(s)}} - E[\overline{\theta''^2_{(s)}}] + 2\overline{\theta'\theta''_{(s)}}\right]\left[\overline{\theta'^2_{(2s)}} - E[\overline{\theta'^2_{(2s)}}] + \overline{\theta''^2_{(2s)}} - E[\overline{\theta''^2_{(2s)}}] + 2\overline{\theta'\theta''_{(2s)}}\right]\right\}$$

et deux expressions analogues obtenues en permutant les indices.

Le développement de cette covariance conduit aux trois valeurs suivantes relatives aux différents cas de chevauchement envisagés :

$$\frac{8}{3}\,Ks\,.\,\overline{\theta_0^2}, \qquad \frac{16}{3}\,Ks\,.\,\overline{\theta_0^2}, \qquad \frac{8}{3}\,Ks\,.\,\overline{\theta_0^2}.$$

Dans ces conditions, les trois covariances des estimations de la variance de diffusion mesurée entre cordes s'écrivent :

$$\rho_{12}\sigma_1\sigma_2 = \frac{10}{9}\cdot\frac{2K^2s^2}{n} + \frac{8}{3}\cdot\frac{Ks\overline{\theta_0^2}}{n} + \frac{2}{n}(\overline{\theta_0^2})^2$$

$$\rho_{23}\sigma_2\sigma_3 = \frac{200}{27}\cdot\frac{2K^2s^2}{n} + \frac{16}{3}\cdot\frac{Ks\overline{\theta_0^2}}{n} + \frac{2}{n}(\overline{\theta_0^2})^2$$

$$\rho_{31}\sigma_3\sigma_1 = \frac{16}{9}\cdot\frac{2K^2s^2}{n} + \frac{8}{3}\cdot\frac{Ks\overline{\theta_0^2}}{n} + \frac{2}{n}(\overline{\theta_0^2})^2$$

LE RAPPORT SIGNAL/BRUIT DE FOND

Les expressions des variances et des covariances que nous venons d'établir sont très difficilement utilisables si l'on ne sait rien sur $\overline{\theta_0^2}$.

En les conservant sous cette forme, l'application du maximum de vraisemblance à l'estimation de K est cependant théoriquement possible mais elle nous conduirait à des développements analytiques hors de proportion avec les approximations que nous avons faites par ailleurs.

Il est d'ailleurs un usage courant de supposer connu *a priori* un ordre de grandeur du rapport de la valeur du signal, Ks, à celle du bruit de fond, $\overline{\theta_0^2}$:

$$\lambda = \frac{Ks}{\overline{\theta_0^2}}.$$

Les variances et les covariances deviennent alors fonction de l'inconnue, K, seule, on les obtient en substituant à $\overline{\theta_0^2}$ sa valeur en fonction de λ et de Ks dans leurs expressions :

$$\sigma_1^2 = \frac{2}{n} K^2 s^2 \left[\frac{4}{9} + \frac{4}{3}\frac{1}{\lambda} + \frac{3}{2}\frac{1}{\lambda^2}\right], \qquad \rho_{12}\sigma_1\sigma_2 = \frac{2}{n} K^2 s^2 \left[\frac{10}{9} + \frac{4}{3}\frac{1}{\lambda} + \frac{1}{\lambda^2}\right]$$

$$\sigma_2^2 = \frac{2}{n} K^2 s^2 \left[\frac{25}{6} + \frac{10}{3}\frac{1}{\lambda} + \frac{3}{2}\frac{1}{\lambda^2}\right], \qquad \rho_{23}\sigma_2\sigma_3 = \frac{2}{n} K^2 s^2 \left[\frac{200}{27} + \frac{8}{3}\frac{1}{\lambda} + \frac{1}{\lambda^2}\right]$$

$$\sigma_3^2 = \frac{2}{n} K^2 s^2 \left[\frac{1\,216}{81} + \frac{16}{3}\frac{1}{\lambda} + \frac{3}{2}\frac{1}{\lambda^2}\right], \qquad \rho_{31}\sigma_3\sigma_1 = \frac{2}{n} K^2 s^2 \left[\frac{16}{9} + \frac{4}{3}\frac{1}{\lambda} + \frac{1}{\lambda^2}\right]$$

Pour connaître λ on se sert des espérances mathématiques données par la loi de la diffusion multiple appliquée aux moyennes des angles observés :

$$\overline{\theta_1^2} = K_1 s + \overline{\theta_0^2} = \frac{2}{3} Ks + \overline{\theta_0^2}$$

$$\overline{\theta_2^2} = 2K_2 s + \overline{\theta_0^2} = \frac{5}{3} Ks + \overline{\theta_0^2}$$

$$\overline{\theta_3^2} = 3K_3 s + \overline{\theta_0^2} = \frac{8}{3} Ks + \overline{\theta_0^2}.$$

Ces trois variables dépendent des deux paramètres K et $\overline{\theta_0^2}$. On les traite momentanément comme si elles étaient indépendantes et équivariantes, et l'on estime λ en traitant par la méthode des moindres carrés les trois estimations expérimentales de la variance de diffusion multiple. On trouve :

$$\lambda = \frac{3\overline{\theta_3^2} - 3\overline{\theta_1^2}}{7\overline{\theta_1^2} + 2\overline{\theta_2^2} - 3\overline{\theta_3^2}}.$$

ESTIMATION PARAMÉTRIQUE DE K

Maintenant que nous connaissons les expressions des variances et des covariances des trois estimations données par l'expérience, le problème se pose d'utiliser au mieux ces estimations pour le calcul de la constante K.

Nous définissons par « utilisation la meilleure » celle qui conduit à la variance minimum sur K.

Une petite difficulté provient de ce que les estimations $\overline{\theta_1^2}$, $\overline{\theta_2^2}$ et $\overline{\theta_3^2}$ sont biaisées, puisque, si minutieuse que soit l'expérience, elles excéderont toujours la diffusion pure de la quantité $\overline{\theta_0^2}$. Cependant en les groupant deux à deux, on peut éliminer le biais ; en effet, formons les deux nouvelles variables :

$$S_1^2 = \overline{\theta_2^2} - \overline{\theta_1^2} \qquad\qquad S_2^2 = \overline{\theta_3^2} - \overline{\theta_2^2}$$

on voit que leurs espérances sont égales et valent précisément K*s*. On se propose alors de rechercher la combinaison linéaire de ces deux variables qui donnera la quantité cherchée S^2, affectée de la variance minimum, soit :

$$S^2 = aS_1^2 + bS_2^2.$$

La première condition évidente que doivent remplir a et b est que :

$$a + b = 1,$$

c'est une propriété des poids statistiques.

Pour exprimer la condition de variance minimum, calculons $\sigma^2(S^2)$; pour cela développons S^2 :

$$S^2 = -a\overline{\theta_1^2} + (a - b)\overline{\theta_2^2} + b\overline{\theta_3^2}.$$

La variance sur S^2 s'obtient simplement en additionnant les variances et les covariances des trois composantes ; on trouve la forme quadratique réduite :

$$\sigma^2(S^2) = \alpha a^2 + \beta b^2 + 2\gamma ab.$$

Pour rendre cette expression minimum, annulons la différentielle totale. Il vient :

$$a = \frac{\beta - \gamma}{\alpha + \beta - 2\gamma} \qquad\qquad b = \frac{\alpha - \gamma}{\alpha + \beta - 2\gamma}.$$

Si l'on attribue ces valeurs aux poids qui figurent dans la variance sur S^2, on obtient la valeur du minimum de la fonction $\sigma^2(S^2)$:

$$\sigma^2(S^2) = \frac{\alpha\beta - \gamma^2}{\alpha + \beta - 2\gamma}.$$

En remplaçant dans ces trois expressions les α, β, γ, par leurs valeurs en fonction des σ^2 et des $\rho_{mp}\sigma_m\sigma_p$ explicités en λ, il vient trois relations de la forme :

$$a = a(\lambda) \qquad b = b(\lambda) \qquad \sigma^2(S^2) = c(\lambda) \times \frac{2K^2s^2}{n}.$$

Ainsi, à chaque valeur de λ correspondent, d'une part, la pondéra-

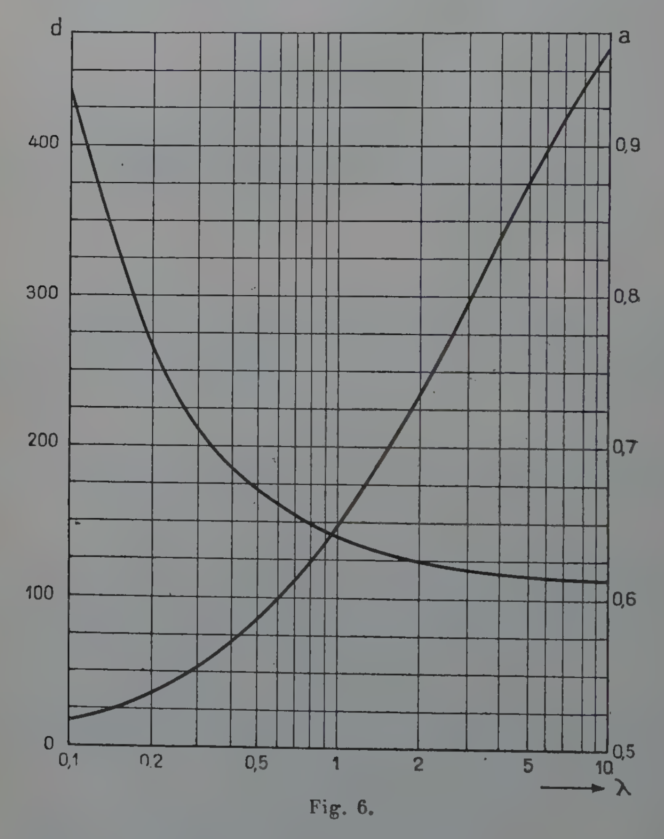


Fig. 6.

tion la plus favorable des deux estimations S_1^2 et S_2^2 et, d'autre part, la variance sur la moyenne pondérée.

On a porté dans la figure 6 les valeurs de a et de b ainsi que la quantité :

$$d = 100\sqrt{\frac{c(\lambda)}{2}}$$

qui nous servira à calculer l'erreur statistique sur la mesure de l'énergie, en fonction des valeurs usuelles de λ. Nous avons également

établi deux expressions approchées qui permettent de retrouver les valeurs données par la table à mieux que 5 o/o près dans l'intervalle $0{,}1 < \lambda < 10$:

$$a(\lambda) = \frac{\lambda^2 + 2\lambda + 1}{\lambda^2 + 3\lambda + 2}$$
$$b(\lambda) = 1 - a(\lambda)$$
$$d(\lambda) = 110 - 30\lambda^{-1}.$$

CONTROLE DE LA QUALITÉ DES MESURES

Nous avons vu (p. 474) que λ est obtenu à partir des trois moyennes expérimentales $\overline{\theta_1^2}$, $\overline{\theta_2^2}$ et $\overline{\theta_3^2}$.

De la valeur de λ trouvée dépendront a et b qui serviront à calculer S^2. Ainsi les nombres a et b qui doivent pondérer les estimations sont fonction de ces estimations elles-mêmes.

On pourrait être tenté de remplacer les poids dans l'expression finale qui donne la quantité cherchée S^2, par leur expression en fonction de $\overline{\theta_1^2}$, $\overline{\theta_2^2}$ et $\overline{\theta_3^2}$, et l'on aboutirait à une forme biquadratique de ces trois estimations seules.

Ce résultat est d'ailleurs évident puisque ces trois estimations sont les seules données expérimentales que nous ayons exploitées au cours de ce calcul. Cependant nous avons jugé prudent de conserver la variable intermédiaire λ qui assure un contrôle de l'expérience au cours du calcul du paramètre K.

Par exemple, toute valeur anormalement petite de λ peut signaler à notre attention ou bien une faute de calcul dans l'établissement des moyennes, $\overline{\theta_1^3}$, $\overline{\theta_2^2}$, $\overline{\theta_3^2}$, ou bien une expérimentation défectueuse qui aurait entraîné une prédominance inacceptable des erreurs de mesure sur le signal.

Au contraire, une valeur trop grande de λ est le signe d'une précision surabondante obtenue au détriment de la richesse statistique de l'ensemble des θ_i observés.

D'autre part, nous allons voir que, comme dans la plupart des problèmes où il s'agit d'extraire un signal d'un bruit de fond, il est statistiquement avantageux de choisir des conditions expérimentales pour lesquelles le rapport du signal au bruit de fond est voisin de l'unité [1].

[1] Ce fait a été également signalé par Goldsack (Conférence sur les émulsions nucléaires, Bruxelles, 1951).

ERREUR STATISTIQUE SUR L'ÉNERGIE MESURÉE

L'énergie E étant inversement proportionnelle à la valeur de la diffusion mesurée, S, on pose que l'erreur sur l'énergie observée est égale à l'erreur sur la mesure de la diffusion, ce qui est raisonnable tant que l'erreur relative est inférieure à 50 o/o :

$$\frac{\Delta E}{E} = \frac{\Delta S}{S}.$$

On connaît la valeur de la variance sur S^2 :

$$\sigma^2(S^2) = c(\lambda) \times \frac{2K^2s^2}{n} = c(\lambda) \times \frac{2}{n}(S^2)^2$$

d'où l'écart type sur S^2 :

$$\sigma(S^2) = S^2\sqrt{\frac{2}{n} \times c(\lambda)}$$

et l'écart type sur S :

$$\sigma(S) = \frac{1}{2}\frac{\sigma(S^2)}{S} = S\sqrt{\frac{c(\lambda)}{n}}.$$

Alors, l'erreur relative sur E, exprimée en pour cent de l'énergie, qui correspond à un écart type vaut :

$$100\frac{\sigma(E)}{E} = 100\frac{\sigma(S)}{S} = \frac{100}{\sqrt{n}}\sqrt{\frac{c(\lambda)}{2}} = \frac{d}{\sqrt{n}}$$

avec :

$$d = 100\sqrt{\frac{c(\lambda)}{2}}.$$

Ainsi, la valeur vraie de l'énergie sera encadrée 67 fois sur 100 expériences par l'intervalle de confiance :

$$(E_{\text{observé}} - \Delta E, E_{\text{observé}} + \Delta E)$$

avec :

$$\Delta E = \frac{d}{100\sqrt{n}} \times E_{\text{observé}}.$$

LA CELLULE OPTIMUM

En suivant le mode opératoire que nous avons proposé, on voit qu'il y a une infinité de façons de mesurer la diffusion multiple d'une trajectoire donnée suivant la longueur de la cellule élémentaire que l'on a choisie. On pourra par exemple opérer sur de très petites cellules s, ce qui présentera l'avantage de nous offrir une statistique riche. Cependant, nous avons vu que pour un microscope donné, e

pour un opérateur donné, l'erreur affectant chaque mesure d'angle vaut en moyenne :

$$\overline{\theta_0^2} = \frac{4\overline{\varepsilon_0^2}}{s^2}$$

de sorte que si la cellule est petite, cette erreur sera grande. Ainsi nous disposons d'un grand nombre d'angles de diffusion mal connus. Au contraire, si l'on opère sur des cellules grandes, on disposera d'un petit nombre d'angles bien connus.

L'étude de la forme de l'erreur statistique établie au paragraphe précédent, montre que la qualité de l'échantillonnage et sa richesse sont deux caractères de l'expérience qui ne contribuent pas de la même façon à la précision sur l'estimation de l'énergie.

Pour mettre en évidence cet effet, écrivons le facteur λ sous la forme :

$$\lambda = \frac{Ks}{\overline{\theta_0^2}} = \frac{Ks^3}{4\overline{\varepsilon_0^2}} \qquad \text{puisque} \qquad \overline{\theta_0^2} = \frac{4\overline{\varepsilon_0^2}}{s^2}.$$

On voit que pour une particule d'énergie donnée dont la trace est examinée avec un appareil dont la précision des pointés est $\overline{\varepsilon_0^2}$, le rapport du signal au bruit de fond est une fonction de la longueur de la cellule seule.

D'autre part, à longueur de trace donnée T, le nombre d'observations le long de T est également une fonction de la longueur s puisque : $T = ns$.

Alors, l'erreur relative sur l'énergie, qui fait intervenir $d(\lambda)$ et n est aussi une fonction de la variable s seule.

Il est difficile d'expliciter l'erreur en fonction de s, en revanche, il est aisé de montrer qu'elle est proportionnelle à $c(\lambda) \times \sqrt[3]{\lambda}$.

On a tracé point par point la valeur de $c(\lambda).\sqrt[3]{\lambda}$ pour les valeurs usuelles de λ. Il est intéressant de remarquer que cette fonction accuse un minimum pour une valeur optima de λ, soit :

$$\lambda_{\text{opt.}} \simeq 1.$$

On définit ainsi les conditions expérimentales qui donnent la meilleure précision sur l'estimation de l'énergie de la particule. Dans la pratique on s'efforcera de respecter la relation :

$$\frac{Ks^3}{4\overline{\varepsilon_0^2}} = 1 \qquad \text{soit :} \qquad s^3_{\text{opt.}} = \frac{4\varepsilon_0^2}{K}.$$

Dans le cas de notre microscope et pour le domaine d'énergie occupé par nos électrons, cette condition est sensiblement satisfaite si l'on utilise une cellule dont la longueur est exprimée par un nombre de

microns sensiblement égal au nombre présumé de MeV de l'électron analysé.

Il est à remarquer que cette « cellule optimum » est indépendante de la longueur sur laquelle on a mesuré la trace (21) puisque T n'intervient pas dans la valeur de $\lambda_{opt.}$.

L'examen de la variation de l'erreur en fonction de λ montre qu'il est préférable de choisir une cellule plus grande que $s_{opt.}$ plutôt qu'une cellule plus petite. Pour s'en assurer, on pourra dans certains cas procéder, avant d'entreprendre les mesures, à une estimation grossière de λ qui servira à déterminer un ordre de grandeur de la cellule la plus favorable.

QUATRIÈME PARTIE

APPLICATION A L'ÉTUDE DU SPECTRE DE DÉSINTÉGRATION DU MÉSON μ

Grâce à la méthode que nous venons de proposer, nous avons pu déterminer la quantité $p\beta c$ d'un certain nombre de particules chargées présentant l'ionisation minimum. On a choisi celles dont une extrémité de la trajectoire observable dans l'émulsion coïncide avec la fin du parcours d'une particule apparemment plus lourde que l'électron mais plus légère que le proton.

Si l'on assimile ces événements à la désintégration β d'un méson μ, la quantité mesurée $p\beta c$ est alors très peu différente de l'énergie E de l'électron dont la distribution dépend des deux paramètres ρ et W.

Le spectre des énergies observées confirme cette hypothèse à une seule exception près, statistiquement significative, qui sera discutée.

Une estimation paramétrique fine de la distribution observée sera nécessairement sensible aux erreurs affectant chacune des mesures individuelles d'énergies. C'est pourquoi nous avons recherché par quelle transformation analytique l'on peut déduire le spectre vrai de la forme asymptotique de la distribution observée. Compte tenu de cette correction, nous montrons qu'il est possible de calculer une estimation du paramètre ρ, indépendante des inévitables erreurs de calibrage qui proviennent d'un manque de justesse des appareils et des imperfections de la théorie de la diffusion simple que nous avons adoptée.

DOMAINE D'APPLICATION DE LA MÉTHODE

Le caractère essentiellement statistique des renseignements donnés par l'étude de la diffusion d'une particule chargée confère aux résultats d'une mesure faite dans les conditions précédemment développées, des propriétés fondamentalement différentes de celles de la plupart des mesures habituelles de la physique.

Considérons par exemple le pointé d'une raie dans l'échelle des longueurs d'onde, ou bien la détermination d'une quantité de mouvement par la mesure d'un rayon de courbure. L'une et l'autre de ces deux estimations peuvent être entachées des erreurs de calibrage des appareils de mesure, d'une part, et d'incertitudes provenant d'un défaut de pouvoir séparateur des appareils d'observation, d'autre part. On peut accéder aux erreurs de calibrage par des recoupements avec des phénomènes connus ; quant aux erreurs d'observation, on peut les rendre aussi petites qu'on le désire en répétant les observations un nombre de fois suffisamment grand. Dans ces conditions, l'erreur finale sur la mesure est exprimée, le plus souvent, sous la forme d'un intervalle de sécurité jouissant des propriétés d'une erreur métrologique.

Le cas d'une mesure de diffusion multiple est différent, les erreurs de calibrage subsistent bien mais la grandeur que l'on mesure n'est plus fonctionnellement liée à la quantité que l'on veut déterminer, c'est une variance associée à la quantité que l'on observe. Comme cette variance est estimée à partir d'un nombre fini, n, d'observations, elle est toujours entachée d'une erreur grande, supérieure ou égale à $\sqrt{\frac{2}{n}}$ en valeur relative.

De plus, cette estimation de la variance obéit grossièrement à une loi de χ^2 qui donne une probabilité faible mais non nulle de trouver des valeurs très en dehors de l'intervalle de sécurité qui encadre la valeur vraie.

C'est pour ces raisons que l'examen de la diffusion multiple considéré sous l'aspect d'une technique adaptée à la reconnaissance de l'énergie, par exemple d'un électron relativiste, trouve son meilleur champ d'application dans l'étude des propriétés d'un ensemble d'électrons, plutôt que dans la discussion d'un cas particulier.

C'est ainsi que nous avons été amené à préciser, par cette méthode, les valeurs des paramètres du spectre de désintégration du méson μ, observé dans des émulsions exposées en altitude.

CHOIX DES TRACES ÉTUDIÉES

Les événements que nous avons analysés ont été recueillis dans des plaques Ilford G5 au cours de vols stratosphériques sans plafonnement. Les plaques étaient emportées par des ballons en caoutchouc gonflés à l'hydrogène (14). L'altitude d'éclatement était prévue entre 25 et 30 km. et au cours de chaque vol, elle a été contrôlée soit à l'aide d'un barographe, soit à l'aide d'un baromètre dont les indications nous étaient transmises radioélectriquement.

L'examen de la répartition des noyaux lourds du rayonnement cosmique enregistrés dans l'émulsion a permis, en outre, de confirmer les indications d'altitude données par les appareils de mesure emportés par les ballons (19).

Après développement, les plaques ont été soumises aux examens habituels de sensibilité (6) et de déformation (22). Toutes celles qui n'ont pas répondu aux conditions exigées ont été rejetées.

Sur dix plaques exposées dans ces conditions et entièrement explorées, nous avons retenu tous les événements présentant l'apparence d'une désintégration $\mu \rightarrow \varepsilon$, dont la branche secondaire avait une longueur supérieure à 600 μ.

Le choix de cette longueur limite est un peu arbitraire ; c'est un moyen terme entre le désir d'opérer sur des traces longues, donnant une valeur précise de l'énergie, et la crainte de choisir un échantillonnage d'où seraient exclues les traces courtes. En effet, cette dernière manière d'opérer favoriserait les traces rectilignes aux dépens des sinueuses qui ont davantage tendance à sortir de l'espace exigu qui leur est offert par l'émulsion. C'est donc parmi les traces les plus courtes que se trouvent les électrons les moins énergiques, et leur élimination inconsidérée risque de biaiser la distribution en fréquence des énergies observées.

Cependant, on peut montrer (7) que dans les conditions dans lesquelles nous avons opéré, cet effet est négligeable sur des électrons d'énergie supérieure à 10 MeV et comme environ 3 o/o seulement des électrons de désintégration du méson μ ont une énergie inférieure à cette limite, il nous a paru suffisant, pour tenir compte de cet effet, d'abandonner les traces ayant une longueur inférieure à 600 μ.

Par ailleurs aucune trace n'a été mesurée sur une longueur supérieure à 3 000 μ, comptée à partir de son point d'origine, ceci dans le but de rendre négligeable la perte d'énergie consécutive à l'émission de rayonnement de freinage.

En effet, si l'on admet une décroissance exponentielle de l'énergie avec le parcours, de la forme :

$$E_x = E_0 e^{-\frac{x}{x_0}} \quad \text{puisque } E > 10 m_0 c^2$$

avec :

$x_0 = 2{,}916$ (longueur de radiation de l'émulsion) ;

la valeur quadratique moyenne de l'énergie E_x au point x, mesurée le long de la trace T, a pour expression :

$$\overline{E^2} = \frac{1}{T}\int_0^T E_x^2 dx$$

or, le résultat d'une mesure de diffusion nous donne :

$$E_{\text{estimé}} = \sqrt{\overline{E^2}} .$$

Si on limite le développement de cette intégrale au terme du second ordre en x on trouve la forme simple :

$$E_{\text{estimé}} = E_0\left[1 - \frac{T}{2x_0}\right]$$

ce qui nous impose une correction de l'ordre de 1,5 o/o pour 1 000 μ de parcours.

Cette correction est du même ordre et opposée à la correction de géométrie que nous avons exposée plus haut. Comme les deux effets croissent l'un et l'autre avec la longueur de la trace, nous négligerons la correction résultante.

MESURES

Nous avons analysé, à l'aide de la méthode proposée, la trace laissée par l'électron présumé dans 42 cas de désintégration du méson μ au repos.

Les résultats des mesures ont été portés dans le tableau ci-joint et sont rangés par ordre d'énergies croissantes.

Nous rappelons les abréviations employées :

N° : numéro d'ordre des traces classées par énergies croissantes,
n : nombre de mesures effectuées sur chaque trace,
s : longueur de la cellule élémentaire de mesure en microns,
λ : rapport de l'amplitude du signal à celle du bruit de fond,
E : estimation de l'énergie de la particule que l'on suppose être un électron pour lequel $p\beta c = E$, exprimée en MeV.

$100\Delta E/E$: écart-type sur l'estimation de E exprimé en pour cent de la valeur trouvée. Les erreurs de calibrage ne sont pas comprises dans la valeur indiquée.

Les traces n°s 13, 31, 34 et 42 présentent une valeur du bruit de fond supérieure à 10 fois celle du signal ($\lambda \leqslant 0{,}1$). Pour ces traces, l'élimination du bruit de fond entre cinq valeurs de la diffusion mesurée sur cinq cellules différentes nous a semblé préférable à

TABLEAU DE MESURES

N°	*n*	*s*	λ	E	100ΔE/E
1	43	20	0,17	9,5	44
2	25	25	1,50	14,5	26
3	49	38,1	2,90	15,1	17
4	31	38,1	2,40	15,9	22
5	41	25,4	0,44	18,6	28
6	14	38,1	6,10	20,5	31
7	37	60,8	10	22,8	19
8	37	38,1	2,70	23,3	20
9	31	38,1	9,40	23,8	20
10	63	60,8	10	26,6	14
11	44	44	3,20	28,0	18
12	42	38,1	0,94	29,0	22
13	31	25,4	0,10	29,4	37
14	19	30,4	0,64	29,8	35
15	80	38,1	0,48	30,3	20
16	9	125	10	33,9	38
17	49	38,1	0,43	35,4	26
18	20	60,8	10	35,5	25
19	56	25,4	0,60	36,8	21
20	54	52	1,50	36,9	18
21	13	40	0,63	37,1	41
22	15	3 ,1	0,59	37,5	44
23	68	52	1,50	38,3	16
24	23	60,8	10	39,2	24
25	36	30	0,23	39,5	40
26	12	52	10	41,1	33
27	48	65	10	41,2	16
28	35	60,8	2,90	43,1	20
29	57	38,1	0,37	45,5	26
30	21	45,6	10	46,5	25
31	30	38,1	0	47,0	37
32	14	38,1	0,71	48,5	41
33	40	30,4	0,47	51,1	28
34	71	38,1	0,10	55,5	26
35	82	60,8	0,87	56,9	16
36	19	50,8	0,40	59,1	42
37	17	39	0,60	60,8	39
38	29	51	0,31	61,1	38
39	30	38,1	0,11	65,0	70
40	54	45,5	0,26	66,6	31
41	19	68,5	3,10	68,0	28
42	28	30,4	0	73,0	49

l'élimination entre trois valeurs de la diffusion. Dans ces quatre cas l'énergie de l'électron et l'écart-type correspondant ont été déterminés graphiquement suivant la méthode proposée page 467.

La particule secondaire du premier méson kappa observé au laboratoire a fait l'objet d'une étude particulière et ne figure pas dans ce tableau.

ESTIMATION PARAMÉTRIQUE DU SPECTRE

On pose que les énergies vraies obéissent à la distribution proposée par Michel (24) :

$$P(E) = \frac{4E^2}{W^4}\left[3(W - E) + 2\rho\left(\frac{4}{3}E - W\right)\right].$$

Dans la mesure où cette distribution est comparable à une distribution de Laplace-Gauss, l'estimation la plus favorable des paramètres ρ et W est donnée par l'étude des moments de la distribution observée. Leurs valeurs théoriques sont définies par :

$$\mu_1 = \int_0^W E.P(E)dE = \frac{2\rho + 9}{15}, \qquad \mu_2 = \int_0^W E^2P(E)dE = \frac{8\rho + 18}{45} W^2.$$

En fait chaque énergie $\mathcal{E}_i$ mesurée est entachée d'une erreur ΔE_i et l'on doit écrire :

$$\mathcal{E}_i = E_i + \Delta E_i.$$

ΔE est une variable aléatoire centrée, obéissant à une loi de Gauss d'écart type $\sigma(E)$ (p. 38). Il en résulte que la distribution des $\mathcal{E}_i$ est symétrique autour des E_i, donc la présence des ΔE_i ne modifie pas la moyenne des E_i, ce que l'on exprime en disant que :

$$\mu_1(\mathcal{E}) = \mu_1(E).$$

En revanche, les erreurs statistiques affectant chacune des énergies mesurées modifient le moment d'ordre deux, en effet :

$$m_2(\mathcal{E}) = \frac{1}{n}\sum \mathcal{E}_i^2 = \frac{1}{n}\sum (E_i + \Delta E_i)^2 = m_2(E) + \overline{(\Delta E)^2}.$$

Ainsi le deuxième moment de la distribution théorique est obtenu à partir du deuxième moment de la distribution observée, en formant :

$$m_2(E) = m_2(\mathcal{E}) - \overline{(\Delta E)^2}.$$

Il en résulte que la forme asymptotique de la distribution observée est systématiquement différente de la distribution vraie.

En utilisant les données expérimentales figurant dans le tableau de mesure, on a formé $m_1(\mathcal{E})$, $m_2(\mathcal{E})$ et $\overline{(\Delta E)^2}$, alors, si l'on identifie μ_1 et μ_2 avec les estimations m_1 et m_2 corrigées, il vient :

$$\mu_1 = \frac{2\rho + 9}{15} W = m_1 = 38,9 \qquad \mu_2 = \frac{8\rho + 15}{45} W^2 = m_2 - \overline{(\Delta E)^2} = 1\,641.$$

On dispose ainsi de deux équations à deux inconnues que l'on peut expliciter en ρ et W, on trouve :

$$W = \frac{5}{3}\mu_1 - \frac{\sqrt{10}}{6}\sqrt{10\mu_1^2 - 9\mu_2} = 55,3 \text{ MeV}.$$

$$\rho = \frac{1}{2\mu_2}\left[10\mu_1^2 - 9\mu_2 + \mu_1\sqrt{10}\sqrt{10\mu_1^2 - 9\mu_2}\right] = 0,72.$$

Ces résultats appellent les remarques suivantes :

1° Un examen rapide de l'expression de ρ montre que le numérateur et le dénominateur sont homogènes en K, il en résulte que l'estimation ainsi faite de ρ est indépendante des erreurs de calibrage affectant nos mesures de la diffusion multiple. Il est néanmoins difficile d'exprimer rigoureusement l'erreur statistique commise sur la valeur de ρ estimée de cette façon. Nous proposons cependant le calcul approché suivant :

Appelons q la valeur du rapport : $q = \frac{\mu_1}{\sqrt{\mu_2}}$. On voit que l'on peut exprimer ρ en fonction de q :

$$\rho = \frac{1}{2}(10q^2 - 9 + q\sqrt{10}\sqrt{10q^2 - 9}).$$

Alors l'erreur sur ρ peut être calculée si l'on connaît la distribution des q_i. Pour cela, considérons la variable de « Student » (24) :

$$t_i = \frac{(m_1 - \mu_1)\sqrt{n}}{\sqrt{m_2 - m_1^2}} \qquad \text{avec :} \qquad \frac{m_1}{\sqrt{m_2^2}} = q_i.$$

Explicitons t_i en q_i et q, il vient :

$$q_i - q = \frac{t_i}{\sqrt{n}}\sqrt{1 - q^2} = \Delta q.$$

Si l'on se reporte à la table (9) donnant la distribution de la variable t, on trouve par exemple dans le cas de 40 tirages :

Probabilité 0,3 pour que :

$$|t| < 0,388 ;$$

à ces valeurs de t correspondent les valeurs extrêmes positives de ρ :

$$0 < \rho < 1,42$$

nous avons donc une chance sur trois pour que l'intervalle (0 — 1,5) encadre la valeur vraie de ρ.

Les valeurs de ρ et W ainsi déterminées montrent que le spectre que nous observons est semblable à celui qui fut découvert à l'aide de la chambre de Wilson (1).

2° Aucune trace mesurée ne présente une valeur de $p\beta c$ supérieure à 73 MeV environ. Comme toutes les traces retenues sont au minimum d'ionisation à 10 o/o près, nous sommes sûrs qu'elles représentent des trajectoires électroniques. Or il est difficile d'admettre, parmi les événements observés, la présence de désintégration β autre que la désintégration du méson μ. Dans ces conditions nous savons que la limite supérieure du spectre est :

$$W = \frac{1}{2} m_0 c^2 \quad \text{avec} \quad m_0 = (210 \pm 2) m_e \quad \text{soit} \quad W = 53{,}6 \text{ MeV}. \quad (3)$$

Si l'on compare cette valeur à la valeur déduite de nos mesures on constate un désaccord de 4 o/o.

Comme l'expression qui nous a servi à calculer W est homogène en K, on doit attribuer cet écart au biais de notre méthode (p. 16).

ÉTUDE D'UN CAS DE DÉSINTÉGRATION ANORMALE

Au cours du dépouillement d'une plaque emportée par les ballons à une altitude qui atteignit 35 000 m., un phénomène particulier a retenu notre attention.

Une particule chargée présentant plutôt l'aspect d'un proton que celui d'un méson μ, venant du support de verre, s'arrête dans l'émulsion après avoir effectué un parcours de 1 300 μ. Le point d'arrêt coïncide avec le départ d'une branche ayant 28 000 μ de long dont l'ionisation est sensiblement constante et voisine de la valeur minimum. Cette branche secondaire sort de l'émulsion par la tranche. La longueur exceptionnelle de la portion de la trajectoire utilisable pour les mesures (17 000 μ) a permis d'obtenir une bonne détermination du produit $p\beta c$ de la particule secondaire.

La mesure de la diffusion multiple de la trace projetée dans le plan de l'émulsion donne :

$$p\beta c = 182 \text{ MeV} \pm 10 \text{ o/o}.$$

Les mesures faites dans un plan perpendiculaire selon notre méthode donnent :

$$p\beta c = 202 \text{ MeV} \pm 15 \text{ o/o}.$$

Ces deux résultats étant statistiquement indépendants, il est permis de les composer afin d'en calculer la moyenne pondérée, suivant des poids inversement proportionnels aux écarts-types, on trouve :

$$p\beta c = 185 \text{ MeV} \pm 9 \text{ o/o}.$$

Compte tenu du fait que la vitesse de la particule secondaire est voisine de c, puisque l'ionisation est minimum à 10 o/o près, il est

facile de calculer une limite supérieure de sa masse, soit 300 masses électroniques, valeur à peine supérieure à celle d'un méson π.

Par ailleurs, la perte d'énergie observée le long de son parcours n'est pas significative ce qui est en faveur d'une masse plus lourde que celle de l'électron. Il est donc raisonnable d'identifier cette particule au méson μ.

Les bilans d'énergie et d'impulsion montrent que la masse de la particule primaire capable d'émettre un secondaire ayant le $p\beta c$ trouvé est au moins égale à 600 masses électroniques. Ceci exclut toute assimilation de ce phénomène à une désintégration du type $\mu \rightarrow \varepsilon$, ou à une étoile provoquée par la capture d'un méson négatif π ou μ, par un noyau de l'émulsion.

La faible longueur et la forte inclinaison de la trace laissée par la particule primaire ne permettent pas une détermination précise de sa masse. Cependant plusieurs séries d'estimations en ont été faites à partir des observations suivantes :

1° Etude de la variation de la diffusion multiple, mesurée par les deux méthodes, en fonction du parcours restant.

2° Etude de la variation de l'ionisation en fonction du parcours, restant (comptage des lacunes et mesure photoélectrique de la densité optique de la trace en chacun de ses points).

L'ensemble des résultats obtenus, tant en valeur absolue que par comparaison avec le comportement des particules de masses connues, nous a conduit à attribuer à la masse de la particule primaire une valeur intermédiaire entre celle du méson μ et celle du proton, la valeur $1\,000^{+500}_{-350}$ pouvant lui être attribuée.

L'ensemble de ces observations confirme l'hypothèse que nous sommes en présence d'un nouveau cas de désintégration de méson lourd du type kappa que l'on peut identifier aux deux exemples précédemment signalés par O'Ceallaigh (30).

CONCLUSION

La mesure de la diffusion multiple d'une particule chargée, faite sur la trace laissée dans l'émulsion photographique est une opération délicate en raison de la petitesse de l'effet que l'on veut exploiter. Il nous a semblé intéressant d'apporter quelques améliorations aux techniques déjà en vigueur dans les différents laboratoires. En particulier, la difficulté de restituer la trajectoire dans l'espace avec la précision exigée, oblige l'expérimentateur à analyser, non pas la

trajectoire elle-même, mais sa projection dans un plan. La perte d'information consécutive à cette restriction de l'échantillonnage peut être partiellement compensée si l'on enrichit la statistique des angles mesurés dans un plan, d'un nombre égal d'angles observés dans un plan perpendiculaire au premier.

Nous avons été ainsi conduit à compléter la mesure de la diffusion latérale par celle de la diffusion verticale.

Pour procéder à de telles mesures, un bon dispositif de repérage de la mise au point du microscope était nécessaire. Les accessoires oculaires ne pouvant nous être d'aucun secours, nous avons associé au mouvement doux du microscope une capacité continûment variable, dont la valeur, lue sur un capacimètre spécialement conçu pour cet usage, nous renseigne sur les positions relatives de l'objectif par rapport à la platine.

La fidélité, la jutesse et la sensibilité de notre montage n'ont pu être obtenues qu'au détriment de la course de l'appareil de mesure qui est limitée à quelques microns.

Devant l'impossibilité d'apprécier des dénivellations supérieures à cette limite, nous avons dû établir une nouvelle méthode de calcul pour estimer la diffusion multiple à partir des valeurs des pentes de n petites cordes, d'autant plus petites qu'elles sont plus plongeantes. Cette manière de procéder s'est montrée avantageuse dans le cas de la méthode que nous proposons, méthode où le bruit de fond est éliminé entre plusieurs estimations de la diffusion multiple, faites sur différentes valeurs de la cellule de diffusion.

A partir de trois estimations extraites du même tableau de mesures, on obtient aisément, par différence, deux estimations non braisées de la diffusion pure, fonctionnellement indépendantes mais statistiquement liées. On a recherché la pondération la plus avantageuse de ces résultats et l'on a calculé l'erreur statistique sur la moyenne pondérée.

Une étude systématique de l'expression de cette erreur nous a permis d'établir que les conditions expérimentales les plus favorables sont celles pour lesquelles le bruit fond à une amplitude sensiblement égale à celle du signal.

Nous avons analysé, par cette méthode, tous les cas de désintégration de mésons μ observés dans dix plaques nucléaires exposées au rayonnement cosmique ; les mesures ont été entreprises dans un double but :

1° confirmation de la valeur des paramètres ρ et W du spectre de désintégration ;

2° recherche de mésons kappa.

A une seule exception près, tous les événements observés sont

identifiables à la désintégration β d'un méson μ. Nous proposons un calcul rigoureux pour déterminer la valeur des paramètres du spectre ainsi que l'erreur sur l'estimation de ρ.

Un cas certain de désintégration anormale a été observé ; nous pouvons l'identifier à un nouveau cas de désintégration du méson kappa.

La comparaison de nos résultats avec les mesures de la diffusion latérale accuse une concordance statistiquement prévisible.

Laboratoire de Physique
de l'École Polytechnique.

BIBLIOGRAPHIE

1. C. Anderson, Leighton, Seriff. — *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 1432.
2. A. Arnulf. — *Bull. Soc. Fr. Miscrosc.*, 1939 [8], **63**, 95.
3. W. H. Barkas. — *Amer. Journ. Phys.*, janv. 1952.
4. Bonetti, C. Dilworth, Occhialini. — *Bull. de l'U. L. B.*, 1951, 3.
5. D. M. Bose, Chowdury. — *Nature*, 1941, **147**, 240.
6. F. Bousser, L. Jauneau. — *Jl. Phys. et Rad.*, 1952, **13**, 465.
7. H. J. Bramson, A. M. Seifert, W. W. Havens. — *Phys. Rev.*, 15 oct. 1952, 304.
8. U. Camerini, P. H. Fowler, W. O. Lock, H. Muirhead. — *Phil. Mag.*, 1950, 413.
9. H. Cramer. — *Mathematical methods of Statistics*, 1951.
10. P. Demers. — *Thèse Paris*, 1950.
11. C. C. Dilworth, S. J. Goldsack, Y. Goldschmidt-Clermont, F. Levy. — *Phil. Mag.*, 1950, 1032.
12. C. C. Dilworth, Occhialini, Vermaesen. — *Bull. de l'U. L. B.*, fév. 1950.
13. E. Fermi. — *Nuclear Physics*, 1950, 35.
14. P. Ferrand, D. Morellet et F. Bousser. — *Ann. Géophys.*, 1950, **217**, 6.
15. R. A. Fischer. — *Statistical Methods for research workers*, 1951.
16. Y. Goldschmidt-Clermont, D. T. King, H. Muirhead, D. M. Ritson. — *Proc. Phys. Soc.*, 1948, A **61**, 138.
17. Y. Goldschmidt-Clermont. — *Nuovo. Cim.*, 1950, **7**, 331.
18. Goudsmit, J. L. Saunderson. — *Phys. Rev.*, 1940. **57**, 24 et 1940, **58**, 36.
19. Hoang Tchang Fong. — *Thèse Paris*, Masson, 1950.
20. C. Mabboux. — *C. R. Acad. Sc.*, 12 mars 1951.
21. C. Mabboux. — *C. R. Acad. Sc.*, 18 juin 1951.
22. Major. — *Jl. Sc. Instr.*, 1952.
23. H. J. Massey, H. C. Corben. — *Proc. Camb. Phil. Soc.*, 1939, **35**, 463.
24. L. Michel. — *Nature*, 1949, **163**, 959.
25. G. Molière. — *Zeits. f. Naturforsch.*, 1947, *2a*, 133.
26. D. Morellet. — Conférence sur les émul. nucl., Bruxelles, 1951.
27. N. F. Mott, H. J. Massey. — *Theorie of atomic collisions*, 1949.
28. J. E. Moyal. — *Phil. Mag.*, 1950, 1058.
29. G. P. S. Occhialini, C. F. Powell. — *Nature*, 1947, **159**, 186.

30. O'Ceallaigh. — *Phil. Mag.*, sept. 1951.
31. D. H. Perkins. — *Nature*, 1947, **139**, 126.
32. F. Perrin. — *Mécanique statistique quantique*, 1939, 174.
33. B. Rossi, K. Greisen. — *Rev. Mod. Phys.*, 1941, **13**, 240.
34. B. Rossi. — *High energy particles*, 1952, 19.
35. Vigneron. — *Rev. de Microsc.*, 1950, **2**, 26.
36. E. J. Williams. — *Proc. Roy. Soc.*, 1939, A **169**, 531.

Le Gérant : G. Masson.

DÉPÔT LÉGAL : 1954, 3e TRIMESTRE, No D'ORDRE 1907, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
BARNÉOUD FRÈRES ET Cie, IMPRIMEURS (31.0566), LAVAL, No 2970. — 7-1954.

LES DISTRIBUTIONS DE DIPÔLES

Par Emile DURAND

RÉSUMÉ. — L'auteur montre que la relation $\vec{D'} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P}$ entre l'induction $\vec{D'}$, le champ $\vec{E}$ et la densité volumique de polarisation $\vec{P}$ est aussi valable pour les distributions occupant un volume nul, à condition de remplacer $\vec{P}$ par des fonctions singulières que l'on utilise maintenant dans tous les domaines de la physique.

On met bien en évidence le fait que les deux vecteurs de champ $\vec{E}$ et $\vec{D'}$ n'ont pas les mêmes sources. Le premier $\vec{E}$ est produit par les charges fictives équivalentes à la polarisation ; c'est un vecteur dérivant d'un potentiel scalaire et sa circulation est nulle sur un circuit fermé. Le deuxième $\vec{D'}$ est produit par les courants magnétiques fictifs équivalents à la polarisation ; il dérive d'un potentiel-vecteur $\vec{A'}$ et son flux à travers une surface fermée est toujours nul. Pour que ces propriétés ne soient pas escamotées, il importe de laisser subsister dans les calculs les dérivées des fonctions discontinues aux points mêmes des discontinuités. On donne de nombreux exemples de distributions mettant bien en évidence les propriétés signalées.

On se limite aux dipôles électriques, mais tous les raisonnements peuvent être transposés en magnétostatique avec $\vec{B} = \mu_0 \vec{H'} + \vec{P'}$. Le vecteur $\vec{B}$ est alors produit par les courants électriques fictifs équivalents à la polarisation magnétique et il dérive d'un potentiel-vecteur $\vec{A}$. Le vecteur $\vec{H'}$ est produit par les masses magnétiques fixes toujours fictives équivalentes à l'aimantation et il dérive d'un potentiel scalaire V'. Il faut bien distinguer ces deux vecteurs quand, par exemple, on calcule les circulations le long d'une courbe C.

I. — LE POTENTIEL DE POLARISATION

1. Le dipôle ponctuel. — Si le dipôle est placé à l'origine O (fig. 1) et si son moment est $\vec{p}$, le potentiel de polarisation $\vec{\Pi}$ au point M a pour expression

$$\vec{\Pi} = \frac{\vec{p}}{4\pi r} \cdot \tag{1}$$

Il obéit donc à l'équation

$$\Delta\vec{\Pi} = -\vec{P}(x,y,z) \quad \text{en posant} \quad \vec{P}(x,y,z) = -\frac{\vec{p}}{4\pi}\Delta\left(\frac{1}{r}\right). \tag{2}$$

Le second membre de (2) est donc partout nul en dehors de l'origine puisqu'il en est de même de $\Delta(1/r)$. Par contre à l'origine $\Delta(1/r)$ devient brusquement infini. Il est facile de voir que cette fonction $\vec{P}$ est

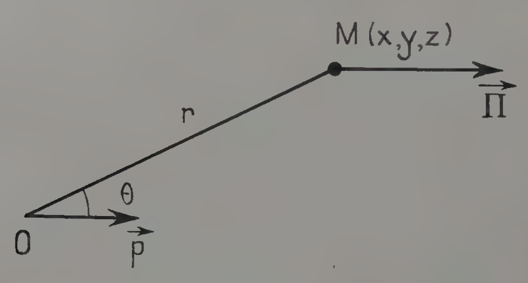


Fig. 1.

la densité volumique de polarisation correspondant à un dipôle ponctuel ; calculons pour cela le moment total

$$\vec{\mathfrak{P}} = \int_v \vec{P}(x,y,z)dv = -\frac{\vec{p}}{4\pi}\int_v \Delta\left(\frac{1}{r}\right)dv = \vec{p} \tag{3}$$

d'après la propriété connue du laplacien de $(1/r)$, l'intégrale de volume étant étendue à tout l'espace. Nous verrons plus loin (formules 112 et 113) qu'il est aussi possible de définir une densité de charge ρ correspondant au dipôle ponctuel.

On comprend pourquoi cette densité est infinie quand on obtient le dipôle ponctuel par un passage à la limite à partir d'un volume polarisé ; si le moment du volume reste constant, comme $v \to 0$, il faut que la densité devienne infinie.

2. Les distributions linéaires de dipôles ponctuels. — Elles sont caractérisées par leur densité linéaire $\vec{\nu}$ telle que

$$\vec{dp} = \vec{\nu}.dl. \tag{4}$$

Le potentiel de polarisation $\vec{\Pi}$ est la somme des potentiels élémentaires, chaque élément dl de la courbe étant assimilé à un dipôle ponctuel ; d'où

$$\vec{\Pi} = \frac{1}{4\pi}\int_c \frac{\vec{\nu}}{r}dl, \tag{5}$$

C étant la courbe de la figure 2. Ce potentiel $\vec{\Pi}$ obéit encore à

(6) $$\Delta\vec{\Pi} = -\vec{P}$$

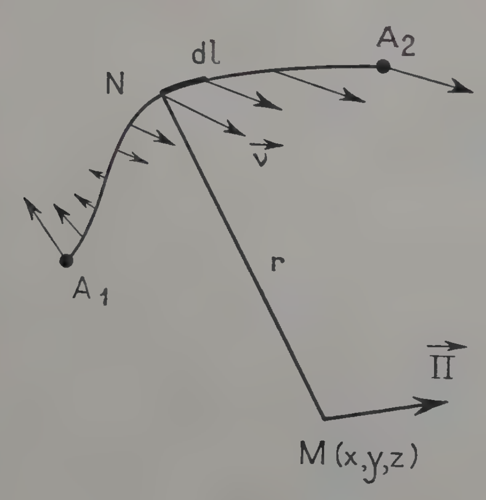


Fig. 2.

à condition de poser

(7) $$\vec{P}(x,y,z) = -\frac{1}{4\pi}\int_c \vec{\nu}.\Delta\left(\frac{1}{r}\right).dl.$$

Cette densité $\vec{P}$ est partout nulle, sauf sur C où elle devient brusquement infinie. Montrons que (7) est la densité volumique correspondant à une densité linéaire $\vec{\lambda}$. On a en effet

(8) $$\int_v \vec{P}(x,y,z)dv = -\frac{1}{4\pi}\int_c \vec{\nu}dl \int_v \Delta\left(\frac{1}{r}\right)dv = \int_c \vec{\nu}.dl.$$

Voici deux exemples de distributions linéaires :

1. Portion de droite uniformément polarisée dans le sens longitudinal (fig. 12). — La formule (5) donne

(9) $$\Pi_x = \Pi_y = 0 \qquad \Pi_z = \frac{\nu}{4\pi}\int \frac{d\zeta}{D}.$$

Sur la figure (12) on voit que l'on a

$$\operatorname{Cotg} \alpha = \frac{z-\zeta}{\rho} \quad \text{d'où} \quad \frac{d\zeta}{D} = \frac{d\alpha}{\sin \alpha}$$

et

(10) $$\Pi_z = \frac{\nu}{4\pi}\left[\operatorname{Log} \operatorname{tg} \frac{\alpha}{2}\right]_{\alpha_1}^{\alpha_2} = \frac{\nu}{4\pi} \operatorname{Log} \left\{ \frac{\operatorname{tg}(\alpha_2/2)}{\operatorname{tg}(\alpha_1/2)} \right\}.$$

Mais d'autre part les relations métriques dans le triangle A_1A_2M donnent

$$\frac{\operatorname{tg}(\alpha_2/2)}{\operatorname{tg}(\alpha_1/2)} = \frac{D_1 + D_2 + 2c}{D_1 + D_2 - 2c} \quad \text{avec} \quad A_1A_2 = 2c$$

d'où

(11) $$\Pi_z = \frac{\nu}{4\pi} \operatorname{Log} \frac{a+c}{a-c} \quad \text{en posant} \quad D_1 + D_2 = 2a.$$

Voyons comment cette dernière formule (11) redonne l'expression (1) relative au dipôle ponctuel par un passage à la limite. On fait $2C\nu = p_z$; dans ce passage on a

$$a \to r \quad c \to 0 \quad \operatorname{Log} \frac{a+c}{a-c} \# \operatorname{Log}\left(1 + \frac{2c}{a}\right) \# \frac{2c}{a} \to \frac{2c}{r}$$

d'où finalement

$$\Pi_z \to \frac{\nu}{4\pi} \frac{2c}{r} \to \frac{p_z}{4\pi r}$$

ce qui est le résultat cherché.

2. Droite indéfinie polarisée normalement *(Dipôle cylindrique)* (fig. 3). — L'expression (5) n'est utilisable que si l'intégrale a un sens.

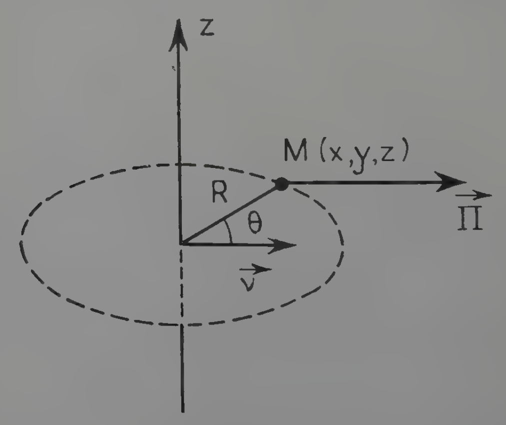


Fig. 3.

Quand la courbe C a une longueur infinie l'intégrale peut être divergente. C'est le cas de la distribution que nous considérons, et il faut remplacer (5) par

(12) $$\vec{\Pi} = -\frac{1}{2\pi} . \vec{\nu} . \operatorname{Log} R \quad \text{avec} \quad R = \sqrt{x^2 + y^2}.$$

Ce potentiel ne dépend donc que de deux variables x et y.

Pour une telle distribution il n'est pas question de calculer le

moment total qui est infini ; il faut considérer que ce dipôle cylindrique est l'élément de base de l'espace à deux variables. On a

(13) $$\Delta\vec{\Pi} = -\vec{P}(x,y) \quad \text{avec} \quad \vec{P}(x,y) = \frac{\vec{\nu}}{2\pi}.\Delta \operatorname{Log} R$$

où Δ est le laplacien à deux variables. Vérifions que

(14) $$\int_S \vec{P}(x\ y).dx\ dy = \frac{\vec{\nu}}{2\pi}\int \Delta \operatorname{Log} R.dS = \vec{\nu};$$

on trouve bien la valeur du moment $\vec{\nu}$ par unité de longueur.

3. Les distributions superficielles de dipôles. — Elles sont caractérisées par leur densité superficielle $\vec{\tau}$ définie par

(15) $$\vec{dp} = \vec{\tau}.dS.$$

On a

(16) $$\vec{\Pi} = \frac{1}{4\pi}\int_S \frac{\vec{\tau}}{r} dS.$$

On a toujours (fig. 4)

(17) $$\Delta\vec{\Pi} = -\vec{P}$$

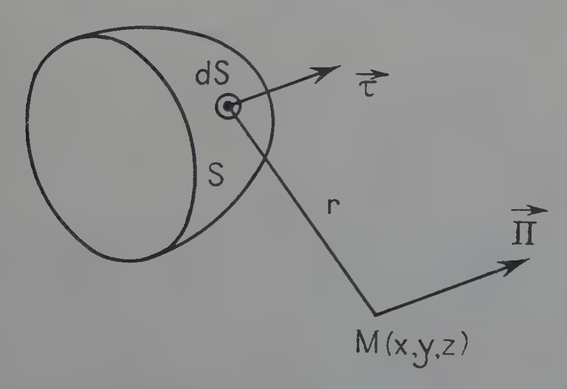


Fig. 4.

si l'on pose

(18) $$\vec{P}(x,y,z) = -\frac{1}{4\pi}\int_S \vec{\tau}.\Delta\left(\frac{1}{r}\right).dS.$$

La densité volumique $\overrightarrow{P}$ est partout nulle sauf sur S où elle est infinie. Il est facile de voir que (18) est la densité volumique correspondant à la densité superficielle $\overrightarrow{\tau}$ puisque

$$(19)\qquad \int_v \overrightarrow{P}(x,y,z)dv = -\frac{1}{4\pi}\int_S \overrightarrow{\tau}.dS \int_v \Delta\left(\frac{1}{r}\right)dv = \int_S \overrightarrow{\tau}.dS.$$

L'expression (13) n'est utilisable que si l'intégrale a un sens. C'est toujours le cas pour des distributions finies sur une surface limitée ; mais l'intégrale peut être divergente pour une surface infinie. C'est le cas d'une distribution uniforme sur un plan indéfini ; dans ce cas il faut remplacer (16) par

$$(20)\qquad \overrightarrow{\Pi} = -\frac{\overrightarrow{\tau}}{2}.r \quad \text{avec} \quad r = \sqrt{(x-\xi)^2} = |\,x-\xi\,| = \pm(x-\xi).$$

On a encore

$$(21)\qquad \Delta\Pi = -P(x) \quad \text{avec} \quad P(x) = \frac{\overrightarrow{\tau}}{2}.\Delta r.$$

$P(x)$ est partout nul sauf pour $x = \xi$ où il devient infini d'après la propriété du laplacien à une variable Δr de la fonction r. On vérifiera sans peine que cette densité volumique $\overrightarrow{P}$ correspond à la densité superficielle $\overrightarrow{\tau}$ puisque l'on a

$$(22)\qquad \int_{-\infty}^{+\infty} P(x)dx = \frac{\overrightarrow{\tau}}{2}\int_{-\infty}^{+\infty}\Delta r.dx = \overrightarrow{\tau}$$

on trouve bien ainsi le moment par unité de surface. Il n'est pas question évidemment de calculer le moment total de la distribution qui est infini.

4. Les distributions volumiques. — Elles sont caractérisées par leur densité volumique $\overrightarrow{P}$, définie par

$$(23)\qquad \overrightarrow{dp} = \overrightarrow{P}.dv.$$

Chaque élément de volume est assimilé à un dipôle élémentaire auquel on applique la formule (1), d'où l'expression du potentiel de polarisation au point M (fig. 5)

$$(24)\qquad \overrightarrow{\Pi} = \frac{1}{4\pi}\int_v \frac{\overrightarrow{P}}{r}\,dv.$$

En prenant le laplacien des deux membres de (24), on obtient

$$(25)\qquad \Delta\overrightarrow{\Pi} = -\overrightarrow{P}.$$

$P(x,y,z)$ est une fonction au sens habituel ; éventuellement $\overrightarrow{P}$ pourrait être infini en un point, sur une droite ou sur une surface, mais le

moment d'un petit volume tendant vers zéro et entourant la singularité serait nul. Si toutefois il n'en était pas ainsi c'est qu'il y aurait aussi une distribution du type précédent.

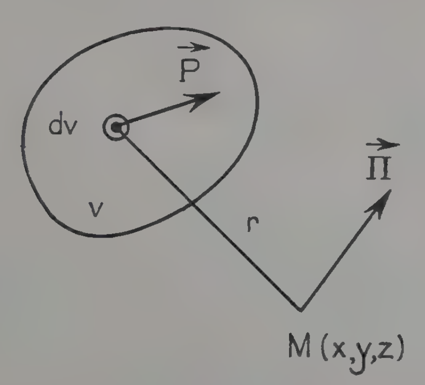


Fig. 5.

On peut obtenir les densités singulières par un passage à la limite à partir d'une densité volumique. Pour une distribution superficielle,

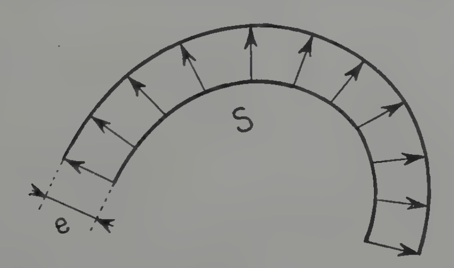


Fig. 6.

on peut partir d'une couche mince, mais finie (fig. 6) ; d'après la propriété connue du laplacien de $1/r$ on peut écrire

$$\vec{P}(xyz) = -\frac{1}{4\pi}\int_v \vec{P}(\xi,\eta,\zeta) \cdot \Delta\left(\frac{1}{r}\right) \cdot dv = -\frac{1}{4\pi}\int_S e\vec{P} \cdot \Delta\left(\frac{1}{r}\right) dS.$$

En passant à la limite $e \to 0$, $\vec{P} \to \infty$ de manière que $e\vec{P}$ reste constamment égal à $\vec{\tau}$, on obtient

$$P(x.y.z) = -\frac{1}{4\pi}\int_S \vec{\tau} \cdot \Delta\left(\frac{1}{r}\right) \cdot dS$$

et l'on a bien ainsi retrouvé (18).

Pour obtenir (7) on partirait d'un tube entourant la courbe C (fig. 7) et de section S très petite. On aurait alors $dv = \overrightarrow{dl}.\overrightarrow{S} = dl.S$ et

$$P(x,y,z) = -\frac{1}{4\pi}\int_c \overrightarrow{P}.S.\Delta\left(\frac{1}{r}\right).dl.$$

En faisant $\overrightarrow{P} \to \infty$, $S \to 0$ mais $\overrightarrow{P}.S$ constamment égal à $\overrightarrow{\nu}$ on arrive à l'expression (7).

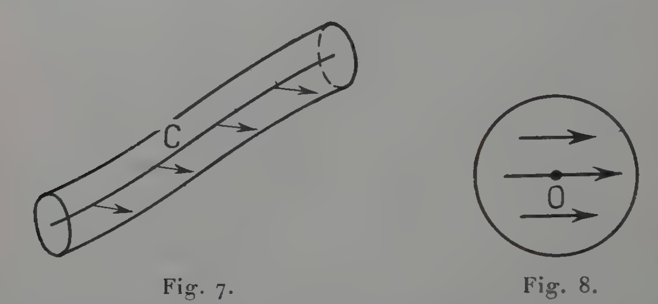


Fig. 7. Fig. 8.

Enfin (2) s'obtiendrait aussi sans difficulté en considérant une sphère entourant le point O (fig. 8). On fait tendre v vers zéro mais $\overrightarrow{P} \to \infty$ de telle sorte que l'on ait constamment $\overrightarrow{P}.v = \overrightarrow{p}$, d'où (2).

5. **Distributions du type le plus général.** — Le potentiel de polarisation $\overrightarrow{\Pi}$ obéit toujours à

$$\Delta\overrightarrow{\Pi} = -\overrightarrow{P} \tag{26}$$

mais $\overrightarrow{P}$ s'explicite en faisant apparaître les densités de tous les types, soit

$$\overrightarrow{P} = \sum_i \left[-\frac{\overrightarrow{p_i}}{4\pi}\Delta\left(\frac{1}{r_i}\right)\right] + \sum_i \left[-\frac{1}{4\pi}\int_{c_i}\overrightarrow{\nu_i}.\Delta\left(\frac{1}{r_i}\right).dl_i\right] + \sum_i \left[-\frac{1}{4\pi}\int_{S_i}\frac{\overrightarrow{\tau_i}}{r_i}dS_i\right] + \overrightarrow{P}(x,y,z). \tag{27}$$

II. — LE POTENTIEL SCALAIRE V ET LE POTENTIEL-VECTEUR $\overrightarrow{A'}$

Ces potentiels sont définis à partir de $\overrightarrow{\Pi}$ par les relations

$$\varepsilon_0 V = -\operatorname{div}\overrightarrow{\Pi} \qquad \overrightarrow{A'} = \overrightarrow{\operatorname{rot}}\,\overrightarrow{\Pi}. \tag{28}$$

Pour les expliciter il nous faut reprendre les différents types de distributions.

I. Dipôle ponctuel. — La définition (28) de V et l'expression (1) de $\vec{\Pi}$ donne

(29) $$\varepsilon_0 V = -\operatorname{div} \vec{\Pi} = -\frac{1}{4\pi}\left(\vec{p} . \overrightarrow{\text{grad}}\left(\frac{1}{r}\right)\right) = \frac{1}{4\pi}\left(\vec{p} . \frac{\vec{r}}{r}\right) . \frac{1}{r^2}$$

soit

(30) $$V = \frac{p}{4\pi\varepsilon_0} \frac{\cos\theta}{r^2}$$

la figure (9) donnant la signification des différentes lettres. On sait que l'on peut aussi obtenir (30) par un passage à la limite à partir du potentiel de deux charges ponctuelles ($-q$, $+q$).

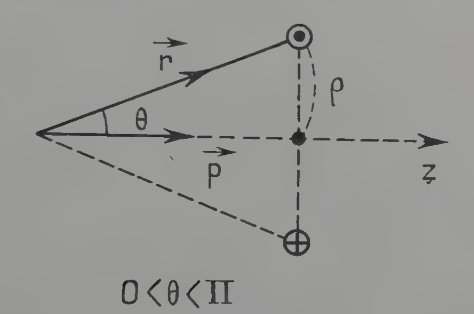


Fig. 9.

De même

(31) $$\vec{A}' = \overrightarrow{\text{rot}}\, \vec{\Pi} = -\frac{1}{4\pi}\left[\vec{p} \times \overrightarrow{\text{grad}}\left(\frac{1}{r}\right)\right] = \frac{1}{4\pi}\left[\vec{p} \times \frac{\vec{r}}{r}\right] . \frac{1}{r^2}$$

soit

(32) $$A_r = A_\theta = 0 \qquad A'_\varphi = \frac{p}{4\pi} . \frac{\sin\theta}{r^2} .$$

Sur l'axe on a $A'_\varphi = 0$, sauf peut-être pour $r = 0$.

2. Distributions linéaires. — On a, d'après les formules précédentes,

(33) $$\varepsilon_0 V = -\operatorname{div} \vec{\Pi} = -\frac{1}{4\pi}\int_c \left(\vec{v} . \overrightarrow{\text{grad}}\left(\frac{1}{r}\right)\right) dl = \frac{1}{4\pi}\int_c \left(\vec{\nu} . \frac{\vec{r}}{r^3}\right) dl.$$

(34) $$\vec{A}' = \overrightarrow{\text{rot}}\, \vec{\Pi} = -\frac{1}{4\pi}\int_c \left[\vec{\nu} \times \overrightarrow{\text{grad}}\left(\frac{1}{r}\right)\right] dl = -\frac{1}{4\pi}\int_c \left[\frac{\vec{r}}{r^3} \times \vec{\nu}\right] dl.$$

On peut décomposer en sa partie tangente à la courbe C et en sa partie normale.

Si $\vec{\lambda}$ est le vecteur unitaire de la tangente à la courbe C, on a

$$\vec{\nu} = (\vec{\lambda}.\vec{\nu})\vec{\lambda} + [\vec{\lambda} \times [\vec{\nu} \times \vec{\lambda}]]. \tag{35}$$

On voit sur la figure (10) que le vecteur normal à $\vec{\lambda}$ se trouve dans le plan $(\vec{\nu}, \vec{\lambda})$.

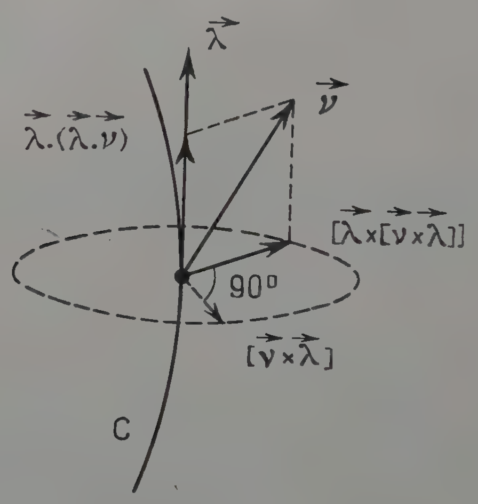


Fig. 10.

Pour V, la partie tangentielle de (35) donne, avec $\overrightarrow{\text{grad}} = -\overrightarrow{\text{grad}}'$

$$\varepsilon_0 V = \frac{1}{4\pi}\int_c (\vec{\lambda}.\vec{\nu})\left(\vec{\lambda}.\overrightarrow{\text{grad}}'\left(\frac{1}{r}\right)\right) dl = \frac{1}{4\pi}\int_c (\vec{\lambda}.\vec{\nu}).\frac{d}{dl}\left(\frac{1}{r}\right).dl \tag{36}$$

$$= \frac{1}{4\pi}\left[\frac{(\vec{\lambda}.\vec{\nu})}{r}\right]_{A_1}^{A_2} - \frac{1}{4\pi}\int_c \frac{1}{r}\frac{d(\vec{\lambda}.\vec{\nu})}{dl}.dl.$$

Ce potentiel (36) est le même que celui d'une charge ponctuelle $(\vec{\lambda}.\vec{\nu})$ en A_2, d'une charge ponctuelle en $-(\vec{\lambda}.\vec{\nu})$ en A_1 et d'une densité linéaire $\frac{d(\vec{\lambda}.\vec{\nu})}{dl}$ le long de la courbe C. A (36) il faut ajouter la partie de (35) normale à C et qui correspond au potentiel d'une ligne double ; une telle ligne double est obtenue par un passage à la limite à partir de deux lignes non parallèles chargées positivement et négativement. On a donc, au total (fig. 11)

$$V = \frac{1}{4\pi\varepsilon_0}\left\{\left(\frac{\vec{\lambda}.\vec{\nu}}{r}\right)_{A_2} - \left(\frac{\vec{\lambda}.\vec{\nu}}{r}\right)_{A_1}\right\} - \frac{1}{4\pi\varepsilon_0}\int_c \frac{d(\vec{\lambda}.\vec{\nu})}{dl}.\frac{dl}{r} \tag{37}$$

$$- \frac{1}{4\pi\varepsilon_0}\int_c \left([\vec{\lambda} \times [\vec{\nu} \times \vec{\lambda}]]\ \overrightarrow{\text{grad}}\left(\frac{1}{r}\right)\right).dl.$$

Passons maintenant au potentiel-vecteur $\overrightarrow{A'}$. D'après (34) et (35) et après quelques transformations on obtient

$$(38)\quad A' = -\frac{1}{4\pi}\int_c (\vec{\lambda}.\vec{\nu})\left[\vec{\lambda}\times\overrightarrow{\text{grad}}\left(\frac{1}{r}\right)\right]dl - \frac{1}{4\pi}\int_c \vec{\lambda}.\left(\overrightarrow{\text{grad}}\left(\frac{1}{r}\right).[\vec{\nu}\times\vec{\lambda}]\right)dl$$
$$+\frac{1}{4\pi}\left\{\frac{[\vec{\nu}\times\vec{\lambda}]}{r}\right\}_{A_1}^{A_2} - \frac{1}{4\pi}\int_c \frac{d}{dl}[\vec{\nu}\times\vec{\lambda}].\frac{dl}{r}.$$

L'interprétation physique des trois derniers termes n'est pas simple ; il s'agit du potentiel d'une double ligne de courant que l'on peut

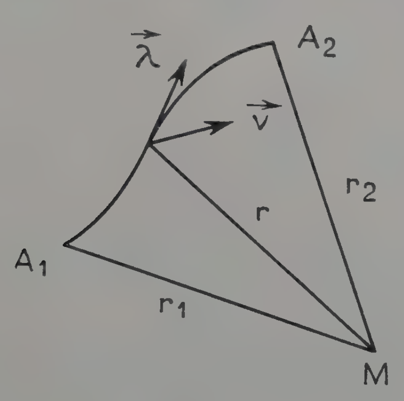


Fig. 11.

obtenir par un passage à la limite ; mais il s'y ajoute des courants transversaux dus au fait que la double ligne n'est pas, en général, conservative.

1. Segment de droite (fig. 12). — Si ν est un nombre algébrique et si $\vec{\lambda}$ est le vecteur unitaire de l'axe des z, on a $\vec{\nu} = \vec{\lambda}.\nu$.

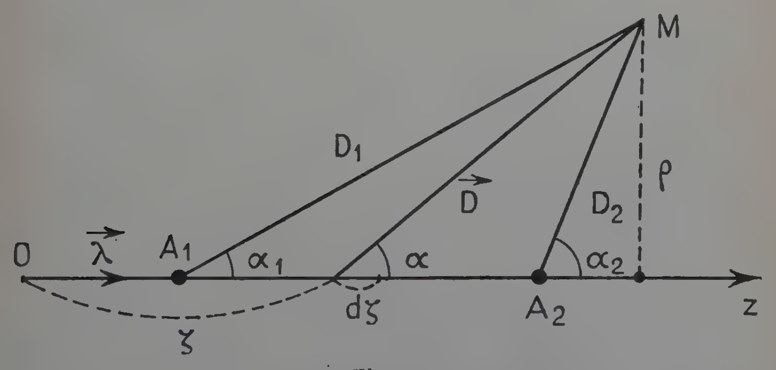


Fig. 12.

D'après (37) le potentiel scalaire est le même que celui de deux charges ponctuelles $+\nu$, $-\nu$ placées respectivement en A_2 et A_1, d'où

(39) $$V = \frac{\nu}{4\pi\varepsilon_0}\left[\frac{1}{D_2} - \frac{1}{D_1}\right].$$

Pour le potentiel-vecteur $\vec{A}'$, (34) donne

(40) $$\vec{A}' = -\frac{\nu}{4\pi}\int_c \left[\frac{\vec{D}}{D^3} \times \vec{\lambda}\right] d\zeta$$

soit

(41) $$A'_r = A'_\theta = 0 \qquad , \qquad A'_\varphi = \frac{\nu}{4\pi}\int_{A_1}^{A_2} \frac{\sin\alpha}{D^2}\, d\zeta.$$

Comme on a

(42) $$\operatorname{cotg}\alpha = \frac{z-\zeta}{\rho} \qquad -\frac{d\alpha}{\sin^2\alpha} = -\frac{d\zeta}{\rho} \qquad \rho = D\sin\alpha = D_1\sin\alpha_1 = D_2\sin\alpha_2$$

on en déduit

(43) $$A'_\varphi = \frac{\nu}{4\pi\rho}\int_{\alpha_1}^{\alpha_2} \sin\alpha\, d\alpha = \frac{\nu}{4\pi\rho}[\cos\alpha_1 - \cos\alpha_2]$$

$$= \frac{\nu}{4\pi D_1}\left[\frac{\cos\alpha_1 - \cos\alpha_2}{\sin\alpha_1}\right] = \frac{\nu}{4\pi D_2}\left[\frac{\cos\alpha_1 - \cos\alpha_2}{\sin\alpha_2}\right].$$

2. Demi-droite (fig. 13). — Si on fait $\alpha_1 = 0$, $\alpha_2 = \theta$, $D_2 = r$ dans (43), cela correspond à une demi-droite polarisée occupant la partie négative de l'axe des z, et A'_φ devient

(44) $$A'_\varphi = \frac{\nu}{4\pi r}\left[\frac{1-\cos\theta}{\sin\theta}\right] = \frac{\nu}{4\pi r}\operatorname{tg}\frac{\theta}{2} \qquad A'_r = A'_\theta = 0.$$

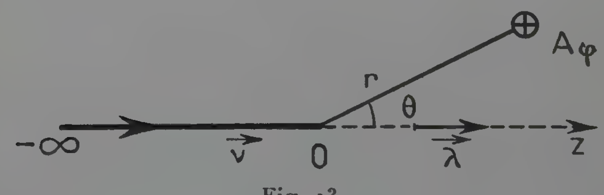


Fig. 13.

Le potentiel scalaire V est donné par (39) soit

(45) $$V = \frac{\nu}{4\pi\varepsilon_0}\cdot\frac{1}{r}.$$

Si on fait $\alpha_1 = \theta$, $\alpha_2 = \pi$, d'où $D_1 = r$ dans (43) on obtient

(46) $$A'_\varphi = \frac{\nu}{4\pi r}\frac{1+\cos\theta}{\sin\theta} = \frac{\nu}{4\pi r}\operatorname{cotg}\frac{\theta}{2} \qquad A'_r = A'_\theta = 0$$

ce qui correspond à une demi-droite polarisée occupant la partie positive de l'axe des z; le potentiel scalaire est de signe contraire soit

$$(47) \qquad V = -\frac{\nu}{4\pi\varepsilon_0} \cdot \frac{1}{r} \cdot$$

3. Deux demi-droites issues de l'origine et polarisées en sens inverse (fig. 14). — On a alors en faisant $\nu = |\nu|$ dans (44) et $\nu = -|\nu|$ dans (46)

$$(48) \qquad A'_\varphi = \frac{|\nu|}{4\pi r}\left[\frac{1-\cos\theta}{\sin\theta} - \frac{1+\cos\theta}{\sin\theta}\right] = -\frac{2|\nu|}{4\pi r}\operatorname{cotg}\theta.$$

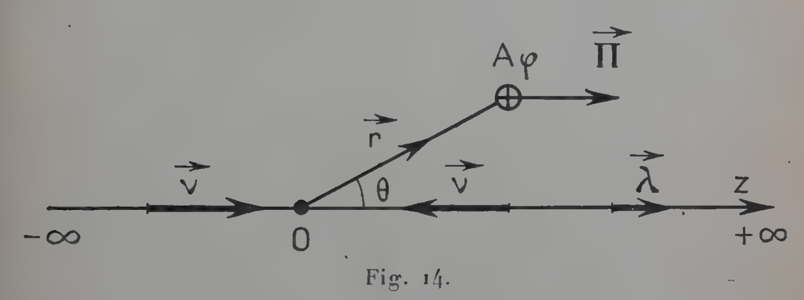


Fig. 14.

Le potentiel $\vec{\Pi}$ qui correspond à (48) s'écrit

$$(49) \quad \Pi_x = \Pi_y = 0 \qquad \Pi_z = \frac{2|\nu|}{4\pi}\operatorname{Log}\operatorname{tg}\frac{\theta}{2} = -\frac{|\nu|}{4\pi}\operatorname{Log}\frac{1+\cos\theta}{1-\cos\theta} \cdot$$

On a, en effet

$$(50) \quad \vec{A'} = \overrightarrow{\text{rot}}\,\vec{\Pi} \begin{cases} A'_x = [\partial_y\Pi_z - 0] = \dfrac{2|\nu|}{4\pi} \cdot \dfrac{1}{\sin\theta} \cdot \dfrac{\cos\theta.\sin\varphi}{r} \\ A'_y = [0 - \partial_x\Pi_z] = -\dfrac{2|\nu|}{4\pi r} \cdot \dfrac{\cos\theta.\cos\varphi}{\sin\theta} \\ A'_z = 0 \end{cases} \cdot$$

car

$$(51) \quad \frac{\partial\theta}{\partial z} = -\frac{\sin\theta}{r} \qquad \frac{\partial\theta}{\partial y} = \frac{\cos\theta.\sin\varphi}{r} \qquad \frac{\partial\theta}{\partial x} = \frac{\cos\theta.\cos\varphi}{r} \cdot$$

Enfin entre les composantes de A′ on a la relation

$$(52) \qquad A'_\varphi = A'_y.\cos\varphi - A'_x.\sin\varphi = -\frac{2|\nu|}{4\pi r}.\operatorname{cotg}\theta$$

ce qui est bien identique à (48).

De (49) on déduit aussi le potentiel scalaire V par

$$(53) \quad \varepsilon_0 V = -\operatorname{div}\Pi = -\partial_z\Pi_z = -\frac{2|\nu|}{4\pi}\frac{1}{\sin\theta} \cdot \frac{\partial\theta}{\partial z} = \frac{2|\nu|}{4\pi} \cdot \frac{1}{r} \cdot$$

L'expression (49) n'est autre, à un coefficient près, que la fonction de Legendre associée de seconde espèce, puisque

$$Q_0^0(\cos\theta) = \frac{1}{2}\,\mathrm{Log}\,\frac{1+\cos\theta}{1-\cos\theta}. \tag{54}$$

On notera enfin que le système de la figure (14) peut servir à définir l'induction et le champ d'une charge ponctuelle [1] de la même manière que le feuillet magnétique associé à un courant linéaire sert à définir le champ et l'induction de ce courant.

4. Droite indéfinie uniformément polarisée (fig. 15).

Quand on fait $\alpha_1 \to 0$, $\alpha_2 \to \pi$ dans (33) et que $D_1 \sin\theta_1$ est constamment égal à $r \sin\theta$ on obtient

$$A'_\varphi = \frac{\nu}{4\pi r}\cdot\frac{2}{\sin\theta} \qquad A'_\theta = A'_r = 0. \tag{55}$$

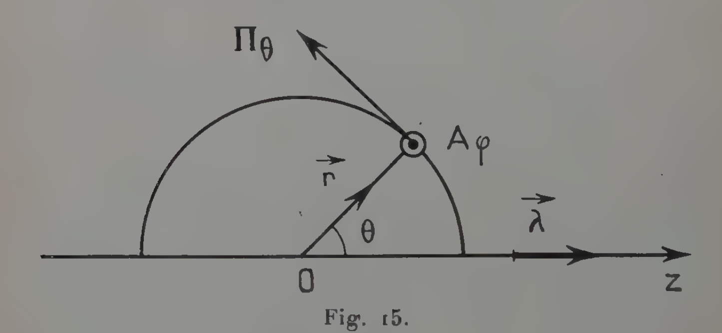


Fig. 15.

Comme les extrémités de la droite sont rejetées à l'infini, il n'y a plus de charges fictives libres à considérer et

$$V = 0. \tag{56}$$

Il est facile de trouver le potentiel de polarisation $\vec{\Pi}$ correspondant à (55) (56); il s'écrit

$$\Pi_r = \Pi_\varphi = 0 \qquad \Pi_\theta = \frac{\nu}{4\pi}\cdot\frac{2}{\sin\theta}. \tag{57}$$

On a eu effet, d'après l'expression du rotationnel et de la divergence en coordonnées polaires,

$$A'_\varphi = (\overrightarrow{\mathrm{rot}}\,\vec{\Pi})_\varphi = \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}(r\Pi_\theta) = \frac{\nu}{4\pi r}\cdot\frac{2}{\sin\theta} \tag{58}$$

$$\varepsilon_0 V = -\mathrm{div}\,\vec{\Pi} = -\frac{1}{r\sin\theta}\cdot\frac{\partial}{\partial\theta}[\sin\theta . \Pi_\theta] = 0.$$

[1] Voir E. Durand, *C. R. Acad. des Sciences*, avril 1954.

Les composantes cartésiennes de $\vec{\Pi}$ sont plus complexes et s'écrivent

$$(59)\qquad \begin{cases} \Pi_x = \frac{\nu}{2\pi} \operatorname{cotg} \theta . \cos \varphi \\ \Pi_y = \frac{\nu}{2\pi} \operatorname{cotg} \theta . \sin \varphi \\ \Pi_z = 0. \end{cases}$$

En tenant compte de (51) et de

$$(60)\qquad \frac{\partial\varphi}{\partial x} = -\frac{\sin \varphi}{r \sin \theta} \qquad \frac{\partial\varphi}{\partial y} = \frac{\cos \varphi}{r \sin \theta} \qquad \frac{\partial\varphi}{\partial z} = 0$$

on vérifiera aisément les expressions (59) ; par exemple

$$\partial_x \Pi_x = \frac{\nu}{2\pi} \left\{ -\frac{\cos \varphi}{\sin^2 \theta} . \frac{\cos \theta . \cos \varphi}{r} - \operatorname{cotg} \theta . \sin \varphi \left(-\frac{\sin \varphi}{r \sin \theta} \right) \right\}$$

$$\partial_y \Pi_y = \frac{\nu}{2\pi} \left\{ -\frac{\sin \varphi}{\sin^2 \theta} . \frac{\cos \theta . \sin \varphi}{r} + \operatorname{cotg} \theta . \cos \varphi . \frac{\cos \varphi}{r \sin \theta} \right\}$$

$$\partial_z \Pi_z = 0$$

ce qui donne bien div $\vec{\Pi} = 0$.

5. Potentiel de polarisation de la demi-droite polarisée. — On ne pouvait l'obtenir par la formule (5) car l'intégrale était divergente. Mais il est facile de voir que l'on peut obtenir le système considéré en superposant deux demi-droites polarisées en sens inverse et une droite indéfinie ; on divise ensuite par 2 pour avoir la densité ν sur la demi-droite qui reste ; si cette dernière coïncide avec la partie négative de l'axe des z (fig. 13), en superposant (49) et (59) on obtient

$$(61)\quad \Pi_x = \frac{\nu}{4\pi} \operatorname{cotg} \theta . \cos \varphi \quad \Pi_y = \frac{\nu}{4\pi} \operatorname{cotg} \theta . \sin \varphi \quad \Pi_z = \frac{\nu}{4\pi} \left\{ \operatorname{Log} \operatorname{tg} \frac{\theta}{2} - 1 \right\}$$

3. Distributions superficielles (fig. 16).

1. Le potentiel scalaire. — On décompose $\vec{\tau}$ en sa partie normale et sa partie tangentielle par l'expression

$$(62)\qquad \vec{\tau} = \vec{n} . (\vec{n} . \vec{\tau}) + [\vec{n} \times [\vec{\tau} \times \vec{n}]]$$

$\vec{n}$ étant le vecteur unitaire de la normale positive à la surface S. On a alors

$$(63)\qquad V = -\frac{1}{\varepsilon_0} \operatorname{div} \vec{\Pi} = -\frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \int_c (\vec{n} . \vec{\tau}) . \left(\vec{n} . \overrightarrow{\operatorname{grad}} \left(\frac{1}{r} \right) \right) dS$$
$$- \frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \int_S [\vec{n} \times [\vec{\tau} \times \vec{n}]] . \overrightarrow{\operatorname{grad}} \left(\frac{1}{r} \right) . dS.$$

La première intégrale est le potentiel d'une couche double de moment $\vec{n} . (\vec{n} . \vec{\tau})$ par unité de surface. Cherchons à transformer la

deuxième intégrale ; pour cela remplaçons le gradient relatif aux variables x, y, z par le gradient primé relatif aux coordonnées du point M sur la surface ; il est égal au premier changé de signe ; de plus, comme ce gradient est multiplié scalairement par un vecteur tangentiel on peut convenir que ces dérivées primées sont prises sur la surface. On peut alors écrire successivement

$$(64)\quad \int_S [\vec{n} \times [\vec{\tau} \times \vec{n}]] . \overrightarrow{\text{grad}}'\left(\frac{1}{r}\right) . dS = \int_S \left[\overrightarrow{\text{grad}}'\left(\frac{1}{r}\right) \times [\vec{n} \times \vec{\tau}]\right] . \vec{n} . dS$$

$$= \int \vec{\lambda} . [\vec{n} \times \vec{\tau}] . \frac{dl}{r} - \int_S (\vec{n} . \overrightarrow{\text{rot}}' [\vec{n} \times \vec{\tau}]) . \frac{dS}{r}$$

$$= \int \vec{n} . \left\{ \overrightarrow{\text{rot}}' \left(\frac{[\vec{n} \times \vec{\tau}]}{r} \right) - \frac{1}{r} . \overrightarrow{\text{rot}}' [\vec{n} \times \vec{\tau}] \right\} dS$$

Fig. 16.

$\vec{\lambda}$ est le vecteur unitaire de la tangente positive à la courbe C ; on sait qu'il est relié au sens positif de la normale $\vec{n}$ à la surface. Posons

$$(65)\qquad \lambda' = (\vec{\lambda} . [\vec{n} \times \vec{\tau}]) \qquad \sigma' = -(\vec{n} . \overrightarrow{\text{rot}}' [\vec{n} \times \vec{\tau}]).$$

Dans ces conditions l'expression (63) de V peut s'écrire

$$(66)\qquad V = \frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \left\{ \int_S (\vec{n} . \vec{\tau}) . d\Omega + \int_S \frac{\sigma'}{r} dS + \int_c \frac{\lambda'}{r} dl \right\} .$$

Ce potentiel est donc le même que celui d'une couche double de densité $(\overrightarrow{n}.\overrightarrow{\tau})$, d'une densité linéaire λ' et d'une densité superficielle σ' de charges simples.

Lorsque les dérivées sont prises sur la surface on a

$$\text{div}'[\overrightarrow{n} \times \overrightarrow{a}] = -(\overrightarrow{n}\,\overrightarrow{\text{rot}'}\,\overrightarrow{a})$$

pour un vecteur $\overrightarrow{a}$ quelconque et si $\overrightarrow{N}$ est le vecteur unitaire de la normale à la courbe C dans le plan de la surface S on a aussi $[\overrightarrow{\lambda} \times \overrightarrow{n}] = \overrightarrow{N}$; on peut donc écrire au lieu de (65)

$$\lambda' = (\overrightarrow{N}.\overrightarrow{\tau}) \qquad \sigma' = -\text{div}'[\overrightarrow{n} \times [\overrightarrow{\tau} \times \overrightarrow{n}]]. \tag{67}$$

On sait (1) que le potentiel V est discontinu à la traversée de la surface S et que l'on a d'une manière plus précise

$$V_{(+)} - V_{(-)} = \frac{1}{\varepsilon_0}(\overrightarrow{\tau}.\overrightarrow{n}). \tag{68}$$

2. Le potentiel-vecteur. — (28) et (62) donnent

$$\overrightarrow{A'} = \overrightarrow{\text{rot}}\,\overrightarrow{\Pi} = -\frac{1}{4\pi}\int_S (\overrightarrow{n}.\overrightarrow{\tau}).\left[\overrightarrow{n} \times \overrightarrow{\text{grad}}\left(\frac{1}{r}\right)\right] dS \tag{69}$$
$$-\frac{1}{4\pi}\int_S \left[[\overrightarrow{n} \times [\overrightarrow{\tau} \times \overrightarrow{n}]] \times \overrightarrow{\text{grad}}\left(\frac{1}{r}\right)\right] dS.$$

Cherchons à transformer la première de ces intégrales ; pour cela nous introduisons le gradient primé pris par rapport aux coordonnées du point M' et comme ce gradient est multiplié vectoriellement par $\overrightarrow{n}$ on peut se contenter de prendre le gradient primé sur la surface. On peut alors écrire successivement

$$\int_S (\overrightarrow{n}.\overrightarrow{\tau})\left[\overrightarrow{n} \times \overrightarrow{\text{grad}'}\left(\frac{1}{r}\right)\right] dS \tag{70}$$
$$= \int_S \left[\overrightarrow{n} \times \left\{\overrightarrow{\text{grad}'}\left(\frac{\overrightarrow{n}.\overrightarrow{\tau}}{r}\right) - \frac{1}{r}\overrightarrow{\text{grad}'}(\overrightarrow{n}.\overrightarrow{\tau})\right\}\right] dS$$
$$= \int_c (\overrightarrow{n}.\overrightarrow{\tau}).\frac{dl}{r} - \int_S [\overrightarrow{n} \times \overrightarrow{\text{grad}'}(\overrightarrow{n}.\overrightarrow{\tau})]\frac{dS}{r}.$$

En posant

$$\varepsilon_0 I' = (\overrightarrow{n}.\overrightarrow{\tau})_c \tag{71}$$
$$\varepsilon_0 \overrightarrow{k'} = -[\overrightarrow{n} \times \overrightarrow{\text{grad}'}(\overrightarrow{n}.\overrightarrow{\tau})]$$

(1) Voir par exemple l'ouvrage de l'auteur : *Electrostatique et magnétostatique*, p. 58.

et en portant dans (69), on obtient

$$(72)\quad \vec{A'} = -\frac{1}{4\pi}\int_S \left[\vec{\tau}_t \times \overrightarrow{\text{grad}}\left(\frac{1}{r}\right)\right] dS + \frac{\varepsilon_0}{4\pi}\int_c I' \frac{\vec{dl}}{r} + \frac{\varepsilon_0}{4\pi}\int_S \vec{k'}\frac{dS}{r}\cdot$$

Les deux derniers termes du second membre de (72) correspondent respectivement au potentiel-vecteur d'un courant magnétique linéaire I' non conservatif, et au potentiel-vecteur d'une nappe de courants magnétiques de densité superficielle $\vec{k'}$. Vérifions que l'apport des courants superficiels compense les pertes du courant linéaire de telle sorte que l'ensemble forme un système conservatif.

Quand un courant n'a pas une intensité constante le long d'une courbe C, il abandonne dans l'unité de longueur une quantité de l'agent transporté égale à $-dI/dl$. En effet, en un point 1 il rentre par seconde une quantité $I_1 = (dQ/dt)_1$ et en 2 distant de 1 de Δl il sort la quantité $I_2 = (dQ/dt)_2$; il est donc resté entre 1 et 2 la quantité $I_1 - I_2 = -\Delta(dQ/dt) = -\Delta I$ et par unité de longueur $-\Delta I/\Delta l$ soit à la limite $-dI/dl$. On peut donc dire que le courant reçoit par unité de longueur la quantité d'agent $+dI/dl$.

Revenons au problème qui nous préoccupe ; d'après la définition de la densité de courant superficiel $\vec{k'}$ la quantité d'agent qui arrive par seconde sur l'unité de longueur de la courbe est

$$(73)\quad (\vec{N}.\vec{k'}) = [\vec{\lambda} \times \vec{n}].\vec{k'} = \vec{\lambda}.[\vec{n} \times \vec{k'}] = \frac{\vec{\lambda}}{\varepsilon_0}.[\vec{n} \times [\text{grad}'(\vec{n}.\vec{\tau}) \times \vec{n}]]$$
$$= \frac{\vec{\lambda}}{\varepsilon_0}.\overrightarrow{\text{grad}'}(\vec{n}.\vec{\tau}) = \frac{1}{\varepsilon_0}\frac{d(\vec{n}.\vec{\tau})}{dl} = \frac{dI'}{dl}\cdot$$

La quantité ainsi apportée est donc bien égale à celle reçue par le courant linéaire $I' = (\vec{n}.\vec{\tau})/\varepsilon_0$.

L'interprétation de la première intégrale de (72) en terme de courants n'est pas simple ; on peut faire apparaître le potentiel-vecteur d'une double nappe de courants mais il reste une densité normale due au fait que la double nappe n'est pas conservative en général. On a en effet.

$$(74)\quad \left[\vec{\tau}_t \times \overrightarrow{\text{grad}}\left(\frac{1}{r}\right)\right] = -[\vec{n} \times \vec{\tau}_t].\left(\vec{n}.\overrightarrow{\text{grad}}\left(\frac{1}{r}\right)\right) + \vec{n}\left(\vec{n}.\left[\vec{\tau}_t \times \overrightarrow{\text{grad}}\left(\frac{1}{r}\right)\right]\right)\cdot$$

On sait [1] que le potentiel vecteur $\vec{A'}$ subit une discontinuité à la traversée de la surface S, qui est donnée par l'expression

$$(75)\quad \vec{A'}_{(+)} - \vec{A'}_{(-)} = [\vec{\tau} \times \vec{n}].$$

[1] Voir par exemple l'ouvrage de l'Auteur déjà cité, p. 59.

3. Exemples de distributions tangentielles. — a) *Cercle de rayon* a. Supposons d'abord $\vec{\tau}$ normal au rayon, soit (fig. 17)

(76) $$\tau_r = \tau_z = 0 \qquad \tau_\varphi = f(r).$$

D'aprés (67) on a

$$\lambda' = 0, \qquad \sigma' = -\operatorname{div}' \vec{\tau} = \frac{1}{r}\frac{\partial \tau_\varphi}{\partial \varphi} = 0\,;$$

donc $V = 0$.

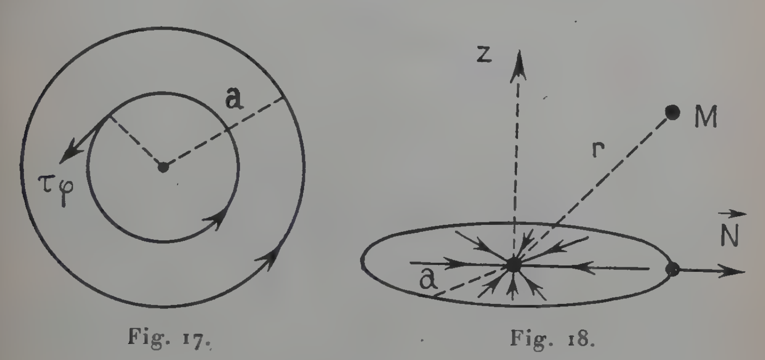


Fig. 17. Fig. 18.

Supposons maintenant $\vec{\tau}$ radial (fig. 18) et de la forme

(77) $$\vec{\tau} = -\frac{\tau}{2\pi}\overrightarrow{\operatorname{grad}'}\,\operatorname{Log}\rho = -\frac{\tau}{2\pi}\frac{\vec{\rho}}{\rho^2} \qquad \text{avec } \rho = \sqrt{\xi^2 + \eta^2}.$$

On a alors

(78) $$\lambda' = (\vec{N}.\vec{\tau}) = -\frac{\tau}{2\pi a}$$

et l'autre intégrale de (66) donne

(79) $$V = \frac{1}{4\pi\varepsilon_0}\cdot\frac{\tau}{2\pi}\int_S \Delta\,\operatorname{Log}\rho\,\frac{dS}{R} = \frac{\tau}{4\pi\varepsilon_0}\cdot\frac{1}{r}$$

ce qui est le potentiel d'une charge ponctuelle placée à l'origine.

b) *Sphère de rayon* a (fig. 19). On donne

(80) $$\tau_r = \tau_\varphi = 0 \qquad \tau_\theta = \frac{q}{2\pi a \sin\theta}\cdot$$

D'après l'expression de la divergence sur une surface, on a

(81) $$\sigma' = -\operatorname{div}'\vec{\tau} = \frac{1}{\sin\theta}\cdot\frac{\partial}{\partial\theta}(\sin\theta.\tau_\theta) = 0.$$

Il faut cependant réserver les points A et B où τ_θ devient infini ; on a à prendre la dérivée de 0/0 qui peut être finie ; pour savoir quelle

est la valeur de la divergence de $\vec{\tau}$ aux points A et B, on transforme en intégrale curviligne par la relation

$$(82) \qquad \int_S \operatorname{div}' \vec{\tau} . dS = \int_c (\vec{N} . \vec{\tau})\, dl$$

où $\vec{N}$ est la normale extérieure à la courbe C qui limite le domaine S sur la surface sphérique considérée.

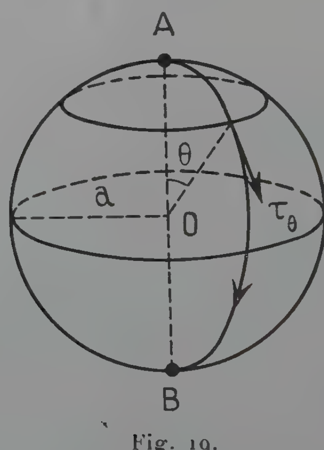


Fig. 19.

On a alors d'après (66), où $\lambda' = 0$, puisque la surface n'a pas de limite,

$$(83) \qquad V = -\frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \int_S \frac{\operatorname{div}' \vec{\tau}}{r}\, dS.$$

Comme $\operatorname{div}' \vec{\tau}$ est partout nul, on peut remplacer la surface de la sphère par deux cercles de centres A et B très petits et de rayon $a . \sin \theta$. On peut alors faire sortir r de l'intégrale en lui donnant soit la valeur r_A soit la valeur r_B. On transforme ensuite les intégrales curvilignes par (82), ce qui donne successivement

$$(84) \qquad V = -\frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \left\{ \frac{1}{r_A} \int_0^{2\pi} \tau_\theta a \sin \theta . d\varphi - \frac{1}{r_B} \int_0^{2\pi} \tau_\theta a \sin \theta . d\varphi \right\}$$
$$= -\frac{q}{4\pi\varepsilon_0} \left[\frac{1}{r_A} - \frac{1}{r_B} \right] .$$

Ce potentiel scalaire est donc le même que celui de deux charges ponctuelles $-q$ et $+q$ placées respectivement en A et B.

c) *Cône d'axe Oz* (fig. 20). — On donne

$$(85) \qquad \tau_r = \frac{q}{2\pi r \sin \theta_0} \qquad \tau_\varphi = \tau_\theta = 0.$$

Il n'y a pas à considérer de densité linéaire λ' puisque la surface est limitée par le cercle à l'infini d'axe Oz, qui n'apporte aucune

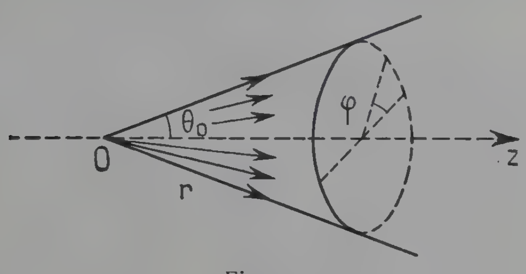


Fig. 20

contribution au potentiel. Il n'y a pas non plus de densité σ', car d'après l'expression de la divergence sur une surface conique on a

$$\text{div}' \vec{\tau} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(r \, . \, \tau_r) = 0.$$

Il faut toutefois examiner la question de plus près pour l'origine O. On a

$$V = -\frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \int_S \frac{\text{div}' \vec{\tau}}{r} dS = -\frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \cdot \frac{1}{r_0} \int_S \text{div}' \vec{\tau} . dS$$

car $\text{div}' \vec{\tau}$ est nulle partout sauf en O. On transforme ensuite une intégrale curviligne prise le long d'une circonférence d'axe Oz et de rayon $r \sin \theta_0$; avec $dl = r \sin \theta_0 . d\varphi$ on peut écrire

$$(86) \quad V = -\frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \cdot \frac{1}{r_0} \int (\vec{\tau} . \vec{N}) \, dl = -\frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \cdot \frac{q}{2\pi_0} \cdot \int_0^{2\pi} d\varphi = -\frac{q}{4\pi\varepsilon_0} \cdot \frac{1}{r_0} \cdot$$

Ce potentiel est donc le même que le potentiel d'une charge ponctuelle $-q$ placée au sommet du cône, comme on s'y attendait physiquement.

d) *Demi-plan limité par l'axe Oz* (fig. 21). — Le potentiel coulombien (66) n'est plus valable. Si l'on a $\vec{\tau} = C^{te}$ on voit d'après (67) que le potentiel scalaire est le même que celui d'une ligne uniformément chargée. Avec les données

$$(87) \qquad \tau_x = \tau \qquad \tau_y = \tau_z = 0$$

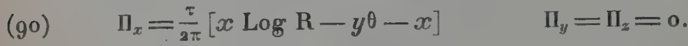
on a $\lambda' = \tau$, $\sigma' = 0$ et l'on sait que les potentiels d'une telle distribution s'écrivent

$$(88) \qquad V = -\frac{\tau}{2\pi\varepsilon_0} \text{Log } R \qquad A'_x = A'_y = 0 \qquad A'_z = \frac{\tau}{2\pi} . \theta$$

avec

(89) $$R = \sqrt{x^2 + y^2} \qquad \theta = \text{arc tg}\,\frac{y}{x}$$
$$-\pi < \theta < \pi.$$

Il est facile de trouver le potentiel de polarisation correspondant à (88) ; il s'écrit



(90) $$\Pi_x = \frac{\tau}{2\pi}\left[x \operatorname{Log} R - y\theta - x\right] \qquad \Pi_y = \Pi_z = 0.$$

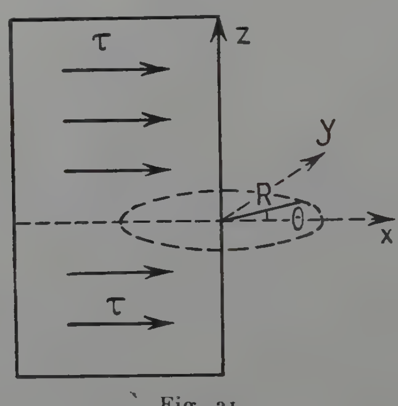


Fig. 21.

On vérifie sans peine que l'on a

(91) $$\varepsilon_0 V = -\operatorname{div}\vec{\Pi} \qquad (\overrightarrow{\text{rot}}\,\vec{\Pi})_z = -\partial_y \Pi_x = \frac{\tau}{2\pi}\,.\,\theta$$
$$= -\frac{\tau}{2\pi\varepsilon_0}\operatorname{Log} R \qquad (\overrightarrow{\text{rot}}\,\vec{\Pi})_x = (\overrightarrow{\text{rot}}\,\vec{\Pi})_y = 0.$$

(On notera que le crochet de (90) est la partie réelle de $z\,(\operatorname{Log} z - 1)$ avec $z = x + iy$).

4. Distributions de dipôles normaux. — Ces distributions sont les plus connues et dans le cas particulier où la grandeur du vecteur $\vec{\tau}$ est constante, on a d'après (66) (72)

(92) $$V = \frac{\tau}{4\pi\varepsilon_0}\,\Omega.$$

(93) $$\vec{A}' = \frac{\tau}{4\pi}\int_c \frac{\vec{dl}}{r}\,.$$

Ces formules sont bien connues en magnétostatique car elles correspondent aux feuillets magnétiques. Ici nous avons un feuillet électrique et $\vec{A}'$ est le potentiel-vecteur d'un courant magnétique fictif constitué par des masses magnétiques fictives en mouvement.

Si l'on ne prend aucune précaution, le potentiel V n'est pas uniforme car Ω a une infinité de détermination. Pour que V soit uniforme il suffira de préciser que Ω est compris entre deux limites différant de 4π. Par exemple si S est une surface fermée, on a

(94) $\Omega = 0$ à l'extérieur $\Omega = 4\pi$ à l'intérieur (fig. 22).

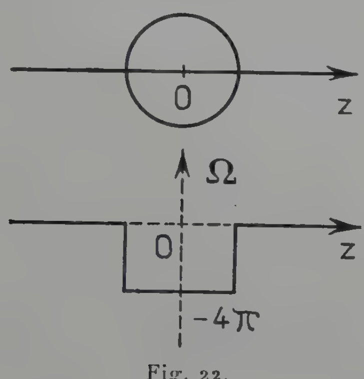


Fig. 22.

Pour un *plan indéfini*, si l'on choisit la normale $\vec{n} = (n_z = 1, n_x = n_y = 0)$ on a

(95) $\Omega = 2\pi$ pour $z > 0$ $\Omega = -2\pi$ pour $z < 0$.

La variation de Ω le long de Oz est donnée par conséquent par la courbe de la figure 23.

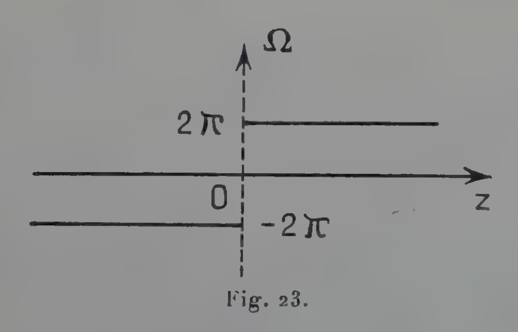


Fig. 23.

Pour un *demi-plan*, d'arête Oz (fig. 24), on a

(96) $\Omega = -2\varphi = -2 \operatorname{arc\,tg}\left(\frac{y}{x}\right)$ avec $-\pi < \varphi < \pi$.

En effet du point P le demi-plan est vu sous l'angle 2φ. En général deux demi-plans formant un dièdre d'angle φ interceptent sur la sphère de rayon 1 ayant son centre sur l'arête du dièdre, une surface 2φ. On a en effet

$$S = \Omega = \int^{\pi} d\theta \int_0^{\varphi} \sin\theta . d\varphi = \varphi \int^{\pi} \sin\theta . d\theta = 2\varphi .$$

On voit nettement que Ω est multiforme avec (96) et qu'il faut limiter le domaine de variation de φ pour avoir une fonction uniforme des coordonnées dans le plan x,y.

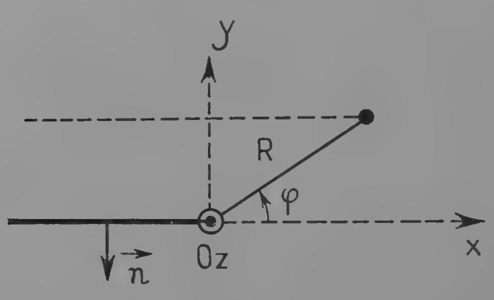


Fig. 24.

On notera qu'à l'origine, Ω prend toutes les valeurs depuis $-\pi$ jusqu'à π. On a un phénomène analogue pour toute surface S limitée par une courbe C ; sur la courbe, Ω prend toutes les valeurs comprises entre les valeurs de part et d'autre de S.

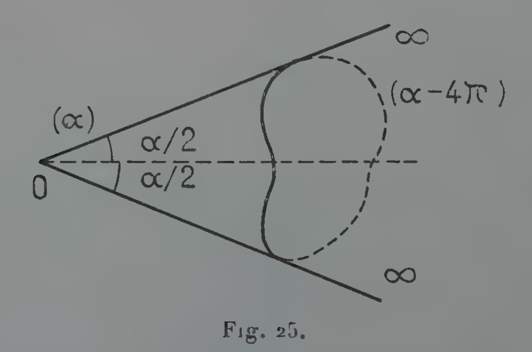


Fig. 25.

Pour un cône ouvert (c'est-à-dire n'ayant pas de base) de demi-angle au sommet $\alpha/2$, on a (fig. 25)

(97) à l'intérieur : $\Omega'' = (\alpha - 4\pi)$ à l'extérieur : α.

Dans tous les cas, quelle que soit la surface S, on sait que Ω présente une discontinuité de $\pm 4\pi$ quand on traverse S.

Sur la surface même, en un point régulier, la valeur de Ω est la demi-somme des valeurs voisines et de part et d'autre de S. $\Omega_S = 2\pi$ pour la sphère; $\Omega_S = 0$ pour le plan; $\Omega_S = \alpha - 2\pi$ pour le cône ouvert.

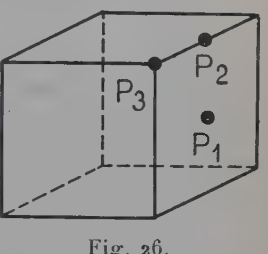


Fig. 26.

La relation $2\Omega_S = \Omega_{(+)} + \Omega_{(-)}$ n'est pas valable quand la surface présente un point singulier. Par exemple, en un point conique, pour une surface fermée, on a Ω_S qui est égal à l'angle solide des tangentes. Pour le cône ouvert de la figure (25), on a $\Omega_S = 0$ au point O. Pour le cube de la figure 26, on a

$$\Omega_S = -\pi \text{ au point } P_2$$

$$\Omega_S = 2\pi \text{ au point } P_1$$

$$\Omega_S = -\frac{\pi}{2} \text{ au point } P_3.$$

Si nous voulons que le potentiel (92) donne une valeur du champ partout, y compris la surface S elle-même, il faut définir les dérivées d'une fonction discontinue en un point de discontinuité.

4. Distributions volumiques. — On en trouvera une étude détaillée dans l'ouvrage déjà cité de l'auteur (p. 62).

III. LE CHAMP $\vec{E}$ ET L'INDUCTION $\vec{D'}$

1. Formules générales. — Ces vecteurs sont définis à partir de V et $\vec{A'}$ par les expressions

$$\vec{E} = -\overrightarrow{\text{grad}}\, V = \frac{1}{\varepsilon_0} \overrightarrow{\text{grad}}\, \text{div}\, \vec{\Pi} \tag{98}$$

$$D' = \overrightarrow{\text{rot}}\, \vec{A'} = \overrightarrow{\text{rot}}\, \overrightarrow{\text{rot}}\, \vec{\Pi}.$$

Si l'on tient compte de l'identité $\overrightarrow{\text{rot}}\, \overrightarrow{\text{rot}} = \overrightarrow{\text{grad}}\, \text{div} - \Delta$ et de (2), (6), (14), (22), on voit que les potentiels obéissent aux équations

$$\overrightarrow{\text{rot}}\, \vec{A'} - \varepsilon_0\, \overrightarrow{\text{grad}}\, V = \vec{P} \tag{99}$$

et

$$\text{div}\, \vec{A'} = 0 \tag{100}$$

puisque la divergence d'un rotationnel est toujours nulle.

Cette formule (99) peut encore s'écrire

(101) $$D' = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P}.$$

C'est la relation bien connue entre l'induction, le champ et la densité volumique de moment électrique. $\vec{P}$ est une fonction ordinaire pour les distributions volumiques ; il devient infini pour toutes les distributions occupant un volume nul et il est alors représenté par les expressions (2), (7), (18). $\vec{P}$ étant nul en dehors des distributions, on a donc

(102) $$\vec{D'} = \varepsilon_0 \vec{E}.$$

Cependant il faudrait se garder de substituer purement et simplement (102) à (101) pour des distributions occupant un volume nul. On en déduirait des conséquences qui seraient incompréhensibles et l'on ne pourrait plus mettre en évidence le fait que $\vec{D'}$ et $\vec{E}$ n'ont pas les mêmes sources.

Evidemment, si l'on se borne à calculer $\vec{E}$ pour en déduire les forces, il n'y a aucun inconvénient à prendre toujours (102). Par contre certaines propriétés dues à la différence de nature des deux vecteurs disparaîtraient avec cette expression.

Par exemple $\vec{E}$ dérivant d'un potentiel scalaire, on a toujours

(103) $$\overrightarrow{\text{rot}}\, \vec{E} = 0$$

car le rotationnel d'un gradient est toujours identiquement nul. De même la divergence d'un rotationnel étant toujours identiquement nulle, on a

(104) $$\text{div}\, \vec{D'} = 0.$$

De plus $\vec{E}$ est toujours produit par des agents fixes (charges ou dipôles) tandis que $\vec{D'}$ est toujours produit par des agents en mouvement (courants magnétiques fictifs ou double nappe de courants magnétiques fictifs).

De (101) on tire

(105) $$\text{div}\, \vec{E} = -\frac{1}{\varepsilon_0}\, \text{div}\, \vec{P}$$

(106) $$\overrightarrow{\text{rot}}\, \vec{D'} = \text{rot}\, \vec{P}$$

et les second membres de (105), (106) doivent être conservés, même pour des distributions occupant un volume nul. De ces expressions il résulte que l'on a

(107) $$V_{P_1} - V_{P_2} = \int_{P_1}^{P_2} (\vec{E}.\vec{dl}) \qquad \oint (\vec{E}.\vec{dl}) = 0$$

et que le flux de $\vec{D'}$ à travers une surface S s'appuyant sur un contour C ne dépend pas de S, soit (fig. 27)

$$(108) \qquad \Phi' = \int_{S_1} (\vec{D}.\vec{n})dS = \int_{S_2} (\vec{D}.\vec{n})dS$$

et

$$(109) \qquad \Phi' = 0$$

pour une surface fermée.

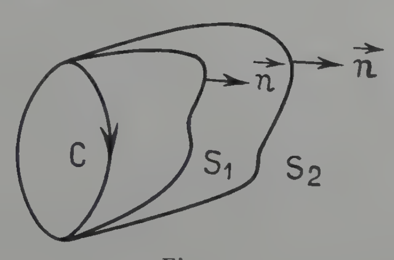


Fig. 27.

Toutefois pour que ces expressions aient une validité absolument générale nous verrons qu'il est nécessaire de prendre en considération les dérivées des fonctions discontinues, comme Ω, aux points de discontinuité.

Les seconds membres de (105), (106) peuvent être interprétés comme des densités volumiques de charges ρ et des densités volumiques de courants $\vec{\imath'}$, soit

$$(110) \qquad \rho = -\operatorname{div} \vec{P} \qquad \varepsilon_0 \vec{\imath'} = \overrightarrow{\operatorname{rot}} \vec{P}.$$

Même quand $\vec{P}$ n'est pas une fonction au sens ordinaire du mot, ces expressions peuvent être utilisées à la manière habituelle.

De (99), (100) on en déduit que les potentiels obéissent aux équations du second ordre

$$(111) \qquad \Delta\vec{A'} = -\overrightarrow{\operatorname{rot}} \vec{P} = -\varepsilon_0 \vec{\imath'} \qquad \Delta V = \frac{1}{\varepsilon_0} \operatorname{div} \vec{P} = -\rho/\varepsilon_0.$$

2. Le dipôle ponctuel. — Vérifions que (2) donne la densité ρ de charge correspondant à un dipôle ponctuel, c'est-à-dire que l'on a

$$(112) \qquad \int_v \rho dv = 0 \qquad \int_v \rho \vec{x} dv = -\int \vec{x}.\operatorname{div} \vec{P}.dv = \vec{p}$$

l'intégrale étant étendue à tout l'espace ; en effet, en notation explicite, on peut écrire successivement

$$(113)\begin{cases} -\int x_u \partial_v \mathrm{P}^v dv = \frac{p_v}{4\pi}\int x_u \partial^v \Delta\left(\frac{1}{r}\right).dv \\ \qquad = \frac{p_v}{4\pi}\int \left\{ \partial^v \left(x_u \Delta\left(\frac{1}{r}\right)\right) - \delta_u^v \Delta\left(\frac{1}{r}\right)\right\} dv \\ \qquad = -\frac{p_v \delta_u^v}{4\pi}\int \Delta\left(\frac{1}{r}\right).dv = p_u \end{cases}$$

car l'intégrale de surface $\int n^v x_u \Delta\left(\frac{1}{r}\right)$ s'annule sur la sphère de l'infini où $\Delta(1/r) = 0$.

Calculons $\overrightarrow{E}$ et $\overrightarrow{D'}$ à partir de (30), (32) et en utilisant les expressions de $\overrightarrow{\mathrm{grad}}$ et de $\overrightarrow{\mathrm{rot}}$ en coordonnées polaires. On a

$$(114)\begin{cases} E_r = (-\overrightarrow{\mathrm{grad}}\ V)_r = -\frac{\partial V}{\partial r} = \frac{2p}{4\pi\varepsilon_0}\frac{\cos\theta}{r^3} \\ \qquad\qquad\qquad\qquad\qquad\qquad E_\varphi = 0 \\ E_\theta = (-\overrightarrow{\mathrm{grad}}\ V)_\theta = -\frac{1}{r}\frac{\partial V}{\partial \theta} = \frac{p}{4\pi\varepsilon_0}\cdot\frac{\sin\theta}{r^3} \end{cases}$$

et

$$(115)\begin{cases} D'_r = (\overrightarrow{\mathrm{rot}}\ \overrightarrow{A'})_r = \frac{1}{r\sin\theta}\cdot\frac{\partial}{\partial\theta}(\sin\theta . A'_\varphi) = \frac{2p}{4\pi}\frac{\cos\theta}{r^3} \\ D'_\theta = (\overrightarrow{\mathrm{rot}}\ \overrightarrow{A'})_\theta = -\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}(r A_\varphi) = \frac{p}{4\pi}\frac{\sin\theta}{r^3} \\ D'_\varphi = (\overrightarrow{\mathrm{rot}}\ \overrightarrow{A'})_\varphi = 0. \end{cases}$$

On a donc

$$(116)\qquad \overrightarrow{D'} = \varepsilon_0 \overrightarrow{E}.$$

Avec les coordonnées polaires on en trouve donc pas le terme $\overrightarrow{P}$ supplémentaire. C'est là un fait général et si l'on ne prend pas de précautions on trouve toujours (116) et non (101).

Si on calcule le flux du vecteur $\overrightarrow{D'}$ à travers une circonférence d'axe Oz, on obtient successivement

$$(117)\quad \Phi' = \int_S (\overrightarrow{n}.\overrightarrow{D'})dS = \int_S (\overrightarrow{n}.\overrightarrow{\mathrm{rot}}\ \overrightarrow{A'})dS = \int_c \overrightarrow{A'}.\overrightarrow{dl} = \int_c A'_\varphi . dl$$
$$= 2\pi\rho A'_\varphi = \frac{p}{2}\frac{\sin^2\theta}{r}$$

et l'on sait que $\Phi' = C^{te}$ est aussi l'équation des lignes de force.

3. Les distributions linéaires. — Vérifions que le potentiel-vecteur (44) d'une demi-droite polarisée, ou le potentiel-vecteur (58) de deux demi-

droites issues de l'origine et polarisées en sens inverse, donnent bien l'induction d'une charge ponctuelle ν et 2ν. On a en effet, pour (44)

$$(118)\quad D'_\varphi = D'_\theta = 0$$

$$D'_r = (\overrightarrow{\text{rot}}\, \overrightarrow{A'})_r = \frac{1}{r \sin\theta} \cdot \frac{\partial}{\partial\theta}\left[\sin\theta \cdot \frac{\nu}{4\pi r} \cdot \frac{1-\cos\theta}{\sin\theta}\right] = \frac{\nu}{4\pi r^2}$$

et pour (58)

$$(119)\quad D'_\varphi = D'_\theta = 0$$

$$D'_r = \frac{1}{r \sin\theta} \cdot \frac{\partial}{\partial\theta}\left[\sin\theta\left(-\frac{2\nu}{4\pi r}\operatorname{cotg}\theta\right)\right] = \frac{2\nu}{4\pi r^2} \cdot$$

Il est aussi facile de vérifier que le potentiel-vecteur (55) donne bien une induction nulle :

$$(120)\quad \begin{cases} D'_\theta = -\dfrac{1}{r}\dfrac{\partial}{\partial r}(r A_\varphi) = \dfrac{1}{r}\dfrac{\partial}{\partial r}\left(r \cdot \dfrac{\nu}{4\pi r} \cdot \dfrac{2}{\sin\theta}\right) = 0 \\ D'_r = \dfrac{1}{r \sin\theta} \cdot \dfrac{\partial}{\partial\theta}(\sin\theta \cdot A_\varphi) = 0 \\ D'_\varphi = 0. \end{cases}$$

4. Les distributions superficielles. — Limitons-nous au cas où l'on a des dipôles normaux, de grandeur constante. On a alors les potentiels (92), (93) et nous voyons que les formules (98) nous obligent à prendre les dérivées d'une fonction discontinue en un point de discontinuité si l'on veut que $\vec{E}$ soit aussi défini sur la surface S.

Prenons le cas simple d'une distribution sur un plan indéfini normal à Oz, à l'origine des coordonnées. La variation du potentiel V est alors représentée sur la figure 23. Sa dérivée est partout nulle sauf pour $z=0$ où elle est infinie et où elle s'exprime à l'aide de la fonction de Dirac $\delta(z)$. On a donc

$$(121)\qquad E_z = -\frac{\partial V}{\partial z} = -\frac{\tau}{\varepsilon_0} \cdot \delta(z) = 0 \qquad\qquad E_x = E_y = 0.$$

Vérifions que la circulation de $\vec{E}$ de $-\infty$ à $+\infty$ est bien égale à la différence de potentiel $-\tau/\varepsilon_0$, conformément à (107). En effet, d'après la propriété connue de la fonction de Dirac, on a

$$(122)\qquad \int_{-\infty}^{+\infty} E_z dz = -\frac{\tau}{\varepsilon_0}\int_{-\infty}^{+\infty} \delta(z) dz = -\frac{\tau}{\varepsilon_0} \cdot$$

Par contre l'induction $\vec{D'}$ est partout nulle et même sur le plan $z=0$.

L'auteur a étudié ailleurs [1] d'une manière détaillée le champ et l'induction d'une couche de dipôles sur un disque circulaire.

[1] *Bulletin de l'Union des Physiciens*, juillet 1954.

Considérons une surface S limitée par une courbe C (fig. 28). $\vec{P}$ est donné par (18) et, entre les vecteurs $\vec{E}$, $\vec{D'}$ il y a la relation (101). Sur la surface S, $\vec{P}$ est infini et le gradient de Ω étant infini il en est de même de $\vec{E}$. Donc $\vec{D'}$ se présente sous la forme ($\infty - \infty$) qui a une vraie valeur finie ; cela va de soi quand on pense que la source de $\vec{D}$ est le courant fictif qui circule le long de la courbe C.

De même en vertu de (107) la circulation de $\vec{E}$ pour une courbe fermée, coupant ou ne coupant pas S est nulle ; il n'en est pas de même

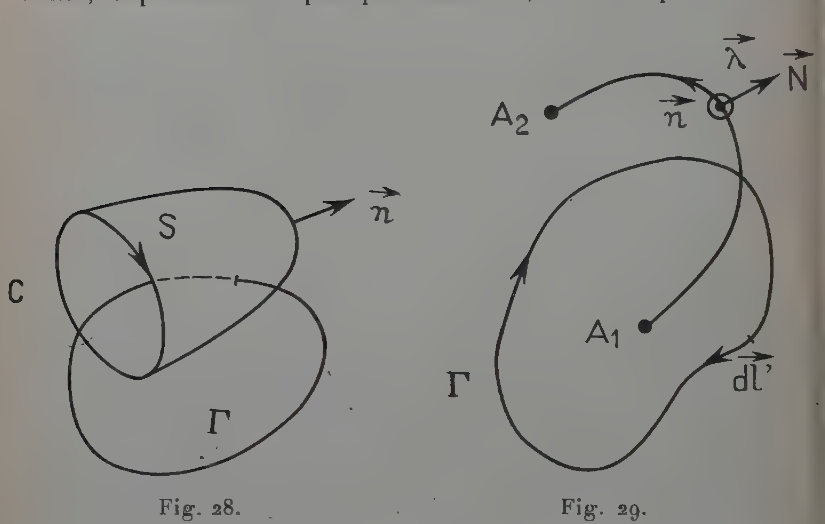


Fig. 28. Fig. 29.

de $\vec{D'}$. Nous avons montré dans une note aux *Comptes rendus de l'Académie des Sciences* (1954, t. 238, p. 1394) que l'intégrale curviligne de

$$(123) \qquad P(x, y, z) = -\frac{\tau}{4\pi}\int_S \vec{n} \cdot \Delta\left(\frac{1}{r}\right) \cdot dS$$

le long d'une courbe fermée Γ coupant la surface S, m fois dans le sens (— +) et n fois dans le sens (+ —), avait pour expression

$$(124) \qquad \int_\Gamma (\vec{P} \cdot \vec{dl}) = (m-n)\tau.$$

Comme on a $\vec{D'} = \varepsilon_0\vec{E} + \vec{P}$ et comme E a une circulation nulle, on en déduit

$$(125) \qquad \int_\Gamma (\vec{D'} \cdot \vec{dl}) = (m-n)\tau$$

ce qui est l'expression du théorème d'Ampère pour les courants magnétiques circulant le long de C.

Pour les systèmes à deux variables, au lieu de (123) et conformément à la figure 29, on a

$$(126) \qquad \vec{P} = \frac{\tau}{2\pi}\int_c \vec{N}.\Delta \operatorname{Log} R . dl \qquad \int_\Gamma (\vec{P}.\vec{dl'}) = (m-n)\tau.$$

Enfin pour les systèmes à une variable, on a

$$(127) \qquad \vec{P} = \tau.\vec{n}.\delta(z) \qquad \int_\Gamma (\vec{P}.\vec{dl}) = (m-n)\tau$$

$\delta(z)$ étant la fonction de Dirac.

5. Distributions volumiques. — Dans ce cas P est une véritable fonction et on ne rencontre aucune difficulté de principe. On sait [1] que les densités fictives volumiques (110) doivent être complétées par les densités superficielles

$$(128) \qquad \sigma = (\vec{n}.\vec{P}) \qquad \varepsilon_0\vec{k'} = -[\vec{n}\times\vec{P}].$$

Dans tous les cas $\vec{E}$ est produit par les charges fictives σ, ρ tandis que $\vec{D'}$ est produit par les courants magnétiques fictifs $\vec{i'}$, $\vec{k'}$.

(Laboratoire de physique théorique de la Faculté des Sciences de Toulouse)

[1] Voir, par exemple, l'ouvrage déjà cité de l'auteur, pp. 62 à 66.

CONTRIBUTION A L'ÉTUDE DES SCHÉMAS DE DÉSINTÉGRATION DE QUELQUES ÉMETTEURS α (1)

Par PAUL FALK-VAIRANT

SOMMAIRE

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques (17 juin 1953).

INTRODUCTION

Les progrès récents de la théorie de l'émission γ permettent d'aborder l'étude des niveaux excités des noyaux par différentes méthodes expérimentales donnant des renseignements complémentaires :

a) Les calculs précis des coefficients de conversion interne pour la couche K des rayonnements magnétiques et électriques et ceux pour les couches L_I L_{II} L_{III} des rayonnements E(1) E(2) M(1) permettent de déduire dans de nombreux cas la nature et la multipolarité des rayons γ, mis en évidence par les mesures des raies électroniques de conversion à l'aide de la spectrographie β.

b) Des renseignements utiles sont également obtenus en tenant compte de la formule de Weisskopf qui permet de prévoir l'ordre de grandeur de la vie moyenne des états excités dans les expériences de coïncidences.

c) Enfin les expériences sur les corrélations angulaires γ-γ ou α-γ permettent, en théorie, de connaître les spins des différents niveaux intervenant dans l'émission des particules en coïncidence. Cette

echnique pourtant ne peut être employée que dans des cas très particuliers.

Pour les émetteurs α présentant des raies de structure fine la mesure par la spectrographie magnétique de l'énergie et de l'intensité des différentes raies forme la base de l'élaboration du schéma de désintégration en donnant certains niveaux d'énergie du noyau formé.

Il faut remarquer pourtant, comme nous le constaterons au cours de ce travail, que la théorie de l'émission α ne permet pas actuellement de déduire les transitions de spin entre ces niveaux. Seule la confrontation des résultats donnés par les différentes techniques expérimentales (spectrométrie α, β et γ ; technique des coïncidences) permet de connaître de manière précise les schémas de désintégration de ces isotopes, qui sont en général très complexes.

Dans ce travail nous avons étudié les rayonnements de conversion des émetteurs : AcC, ^{231}Pa, Io, ^{226}Ra et RTh. Nous avons utilisé principalement la technique de la spectrographie β pour rechercher les raies électroniques de conversion du Pa ; et la technique des coïncidences α-électrons pour déterminer l'intensité absolue des raies de conversion.

Les résultats obtenus sur les schémas de désintégration, nous ont conduits à étudier les théories de l'émission α. En particulier, nous avons donné une méthode de calcul permettant de résoudre de manière relativement simple les équations de Preston. Cette méthode nous a permis de calculer les intensités théoriques des raies de structure fine correspondant au premier état excité des noyaux pairs-pairs.

Il faut remarquer ici que l'étude des schémas de désintégration des émetteurs α apporte une contribution importante à la vérification des hypothèses théoriques faites sur les modèles nucléaires. Rappelons que c'est en étudiant la systématique α qu'Elsasser en 1934 proposa le modèle de la structure en couches, dont la théorie s'est développée récemment. Actuellement, la connaissance des énergies, spins et parités des états excités des noyaux formés par émission α permet de discuter la validité des modèles nucléaires.

CHAPITRE PREMIER

GÉNÉRALITÉS SUR LA THÉORIE DE L'ÉMISSION α

Introduction. — Les différentes théories de l'émission α conduisent à la formule (1) qui donne une relation entre la constante de désintégration λ et l'énergie de la particule α émise.

$$\lambda = PQ_l e^{-2\omega_0}. \qquad (1)$$

Les facteurs du membre de droite ont la signification suivante :

$e^{-2\omega_0}$: Pénétrabilité de la barrière de potentiel d'une particule α de moment angulaire nul.

Q_l : Influence du potentiel centrifuge créé par un moment angulaire $l \neq 0$ de la particule α sur la transparence de la barrière.

P : Facteur représentant la constante de désintégration propre du noyau, abstraction faite de la transparence de la barrière de potentiel.

Ces différents termes sont fonctions des grandeurs suivantes : masse, vitesse, moment angulaire de la particule α, et masse, rayon et nombre atomique du noyau formé.

Dans toutes les théories existantes le terme $Q_l e^{-2\omega_0}$ est approximativement le même.

Par contre, le facteur P a été obtenu par Gamow (29), Sexl (75) et Preston (50) en faisant l'hypothèse que la particule α est préformée dans le noyau (one-body model) et par Bethe (10) et Weisskopf (85) en tenant compte du temps de formation de la particule α au moment de son émission (many-body model). Ces deux conceptions conduisent à des facteurs P de l'ordre de 10^{21} pour le modèle de la particule α préformée et de 10^{15} pour l'autre.

En général, connaissant expérimentalement λ et l'énergie de la particule α on applique la théorie pour calculer le rayon nucléaire r_0 qui intervient dans la formule 1 comme un paramètre.

Il faut remarquer que les rayons nucléaires obtenus par la théorie de l'émission α n'ont pas une signification géométrique parfaitement définie (voir § 2). Mais il est intéressant d'étudier leur variation pour les différents émetteurs α. Cette variation est indépendante de la théorie employée, bien que les rayons calculés par les théories de Bethe et de Weisskopf soient environ 40 p. 100 supérieures à ceux calculés par le modèle de la particule α préformée.

On peut également dans certains cas de structure fine, connaissant l'énergie et l'intensité de la raie fondamentale, prévoir l'intensité des raies d'énergie inférieure. Les résultats sont équivalents pour toutes les théories à l'exception de celle de Preston (voir § 2). Nous exposerons rapidement au paragraphe 1 les théories de Gamow et de Preston, que nous avons employées pour discuter les résultats expérimentaux.

Théories de Gamow et de Preston.

Hypothèses générales. — L'hypothèse des calculs de Gamow et de Preston consiste à supposer la particule α préformée dans le noyau, soumise à l'action d'un champ potentiel constant $V = -U$ à l'inté-

rieur du noyau ($r < r_0$) et d'un champ coulombien $V = \frac{2Ze^2}{r}$ à l'extérieur.

La probabilité qu'une particule α de moment angulaire $l = 0$ et d'énergie $E = \frac{mv^2}{2}$ soit émise est donnée par la relation $\lambda = PG$ où P est le nombre de collisions par unité de temps avec la barrière et G la transparence de la barrière de potentiel.

Le facteur G a l'expression suivante (29) :

$$(2) \qquad G = 4\left(\frac{E-U}{E}\right)^{1/2} \exp\left[-\frac{2\sqrt{2m}}{\hbar}\right]\int_{r_0}^{r^*}(V(r)-E)^{1/2}dr.$$

Le nombre de collisions avec la barrière de potentiel peut être estimé par la relation :

$$P = \frac{v_i}{2r_0}$$

où v_i est la vitesse de la particule α à l'intérieur du noyau.

Formules de Gamow. — Gamow a déduit v_i en supposant que l'état de la particule α à l'intérieur du noyau est égal à l'état stationnaire 1S d'un puits de potentiel de hauteur infinie. Il s'ensuit que la longueur d'onde λ_i de de Broglie associée au mouvement de la particule α à l'intérieur du noyau égale le diamètre du noyau, soit $\lambda_i = 2r_0$. En appliquant la relation $v_i\lambda_i = \frac{2\pi\hbar}{m}$ on obtient : $v_i = \frac{\pi\hbar}{mr_0}$.

En intégrant l'équation 2 (29) on obtient la formule de Gamow donnant la probabilité d'émission d'une particule α d'énergie E et de moment angulaire nul :

$$(3) \qquad \lambda = \frac{8\pi\hbar}{mr_0^2}\exp\left[-\frac{4\pi e^2 Z}{\hbar}\cdot\frac{1}{v_\alpha}+\frac{8e}{\hbar}\cdot(mZr_0)^{1/2}\right]$$

où λ = constante de désintégration,
m = masse réduite du système (noyau + particule α),
Z = nombre atomique du noyau formé,
r_0 = rayon du noyau formé,
v_α = vitesse de la particule α [1].

Lorsque la particule α part avec un moment angulaire l, la barrière de potentiel est augmentée de l'énergie centrifuge et l'intégrale de l'équation 2 s'écrit alors :

$$\int_{r_0}^{r^*}\left[\frac{2Ze^2}{r}+\frac{\hbar^2}{2mr}l(l+1)-E^{1/2}\right]dr.$$

[1] v_α correspond à la vitesse, déduite de l'énergie observée expérimentalement, corrigée de l'énergie de recul du noyau et de l'énergie de dilatation du cortège électronique (8).

Le potentiel centrifuge étant petit comparé au potentiel coulombien on peut développer la parenthèse en fonction du terme :

$$\sigma = \frac{\text{énergie centrifuge}}{\text{energie coulombienne}} = \frac{\hbar}{e} \cdot \frac{1}{(mrZ)^{1/2}} l(l+1) \text{ (1)}$$

Et la formule de Gamow s'écrit :

$$\text{(4)} \qquad \lambda = \frac{8\pi\hbar}{mr_0^2} \exp\left[-\frac{4\pi e^2 Z}{\hbar}\frac{1}{v} + \frac{8e}{\hbar}(mZr_0)^{1/2}\left(1 - \frac{1}{2}\sigma\right)\right].$$

Le terme Q_l de l'équation générale 1 est donc égal dans cette approximation à :

$$Q_l = \exp\left[-\frac{\hbar}{e}\frac{1}{(mZr_0)^{1/2}} l(l+1)\right].$$

Formule de Preston. — Preston (50) avec le même modèle que Gamow, a conduit le calcul de manière plus rigoureuse et obtient deux relations entre les grandeurs λ, v_α, r_0 et U ; où U représente l'énergie potentielle de la particule α à l'intérieur du noyau.

Pour $l = 0$ les équations de Preston s'écrivent sous la forme :

$$\text{(5)} \qquad \begin{cases} a) \ \lambda = \dfrac{2v}{r_0} \dfrac{\mu^2 \operatorname{tg} \alpha_0}{\mu^2 + \operatorname{tg}^2 \alpha_0} e^{-2\omega_0} \\ b) \ \mu = -\operatorname{tg} \alpha_0 \operatorname{tg} (\mu k r_0) \end{cases}$$

où :

$$\mu = \left(\frac{E - U}{E}\right)^{1/2} = \frac{v_i}{v_e}$$

$$\alpha_0 = \arccos\left(\frac{mv^2}{2} \Big/ \frac{2Ze^2}{r_0}\right)$$

$$\omega_0 = \varkappa(\alpha_0 - \sin\alpha_0 \cos\alpha_0)$$

$$\varkappa = \frac{4e^2 Z}{\hbar v}$$

$$k = \frac{mv}{\hbar}$$

les équations 5 permettent, connaissant λ et v de déterminer le rayon nucléaire r_0 et le potentiel U.

Le moment angulaire $l \neq 0$ intervient de deux façons différentes dans cette théorie :

1° dans la transparence de la barrière de potentiel par le même facteur Q_l de la théorie de Gamow ;

2° dans le nombre de collisions de la particule α avec la barrière de potentiel.

(1) Pour les noyaux lourds $\sigma \cong 0{,}024 l\,(l+1)$; il suffit en général de prendre le premier terme du développement.

Qualitativement nous pouvons exprimer l'influence de l à l'intérieur du noyau en remarquant que la grandeur $(\mu k r_0) = (v_i r_0)$ est peu différente du premier zéro de la fonction de Bessel $I\left(l + \frac{1}{2}\right)$ [1]. La vitesse à l'intérieur du noyau (où ce qui est équivalent le nombre de chocs avec la barrière de potentiel) croît approximativement dans le même rapport que les premiers zéros des fonctions $I\left(l + \frac{1}{2}\right)$.

Les équations de Preston pour un moment angulaire $l \neq 0$ s'écrivent [2] :

$$(6)\quad \begin{cases} a)\ \lambda = \dfrac{2v}{r_0} \dfrac{\mu^2 \operatorname{tg} \alpha_0 Q_l e^{-2\omega_0}}{\mu^2(H_l^2 + K_l^2) + \operatorname{tg}^2 \alpha_0 (C_l^2 + S_l^2) + 2\mu \operatorname{tg} \alpha_0 (C_l K_l - S_l H_l)} \\[2ex] b)\ \mu = -\operatorname{tg} \alpha_0 \dfrac{S_l \operatorname{tg}(\mu k r_0) + C_l}{K_l - H_l \operatorname{tg}(\mu k r_0)} \end{cases}$$

où S_l, C_l, K_l, H_l sont des polynômes de la grandeur $M = \frac{1}{(\mu k r_0)}$.

Application des formules de l'émission α. — Les formules de l'émission α ne peuvent être appliquées en toute rigueur, que si on connaît avec précision le schéma de désintégration. En effet l'équation 4 donnant une relation entre les grandeurs λ, v, r_0 et l et les deux équations 6 entre λ, v, r_0, l et U, il faut connaître trois données expérimentales pour résoudre ces équations. Rappelons les méthodes permettant d'obtenir ces différentes grandeurs :

λ est la constante de désintégration partielle se rapportant à une raie d'énergie E_α. Lorsque l'émetteur ne présente pas de raie de structure fine et se désintègre uniquement par émission α, λ est égal à $\frac{L2}{T}$ où T est la période. Si l'émetteur α présente des raies de structure fine on calcule la constante de désintégration partielle de chacune des raies à partir de son intensité relative déterminée expérimentalement. Les équations 4 et 6 peuvent s'appliquer alors à chacune des raies en posant :

$$\lambda_{\alpha_i} = \lambda_\alpha \text{ total} \frac{N_{\alpha_i}}{N_\alpha \text{ total}}.$$

[1] Ceci se conçoit par l'hypothèse du puits de potentiel rectangulaire. La transparence de la barrière de potentiel étant $\ll 1$ il s'ensuit que la fonction d'onde ψ s'annule presque pour $r = r_0$. Pour un état purement stationnaire la grandeur $(\mu k r_0)$ serait exactement égale au premier zéro de la fonction $I\left(l + \frac{1}{2}\right)$.

[2] Dans le travail original de Preston (50), figure un facteur supplémentaire dans l'équation 6 a) mais on peut montrer que ce facteur est analytiquement égal à 1.

v : la vitesse des particules α formant une raie d'énergie E_α peut être déterminée à partir des mesures de spectrographie ;

l : le moment angulaire emporté par la particule α est déterminé par les spins et parités des niveaux initial et final de la transition α considérée. Dans le cas général une transition entre deux niveaux peut s'effectuer avec plusieurs moments angulaires différents qui satisfont aux règles de sélection :

a) $| J_i - J_f | \leqslant l \leqslant | J_i + J_f |$;

b) l ne pouvant prendre que les valeurs paires si $\Pi_i \Pi_f = +$ et que les valeurs impaires si $\Pi_i \Pi_f = -$;

où J_i, J_f, Π_i, Π_f sont les spins et parités des états initial et final.

Les seules transitions qui ne présentent plus de difficulté sur l'attribution du moment angulaire sont celles des noyaux pairs-pairs, pour lesquels il est généralement admis que le niveau fondamental a le spin o et la parité +. Le moment angulaire de ces transitions ne peut alors prendre qu'une valeur unique pour chaque raie α ($l = 0$ pour la raie fondamentale ; $l = J$ pour les raies de structure fine où J est lui-même égal à la multipolarité des rayonnements γ émis entre le niveau excité et le niveau fondamental).

r_0 et U sont des paramètres qui actuellement ne peuvent être déterminés expérimentalement.

On emploie les formules de l'émission α pour déterminer ces paramètres ce qui rend difficile, en général, une vérification objective de l'exactitude de la théorie.

Seuls les noyaux pairs-pairs, présentant des raies de structure fine et, dont on connaît par ailleurs les spins des états excités, permettent de tester de manière complète les formules de l'émission α en calculant les intensités relatives théoriques des raies de structure fine, après avoir déterminé le rayon r_0 à partir de la raie fondamentale.

Remarquons pourtant qu'on peut obtenir une vérification qualitative de la théorie par l'étude de la systématique α, en particulier par la discussion de la loi de Geiger-Nuttal.

Méthode de calcul de la formule de Preston. — La formule de Preston n'ayant pas une forme analytique simple ne peut être résolue que par tâtonnements successifs. La méthode que nous avons employée pour conduire les calculs du paragraphe 3 est la suivante :

En multipliant par kr_0 l'équation 6 *b*) on peut écrire :

$$\frac{1}{kr_0 \operatorname{tg} \alpha_0} = F_l(\mu k r_0).$$

Le membre de droite est une fonction de la variable $(\mu k r_0)$ dans

laquelle n'interviennent pas explicitement les grandeurs caractéristiques de l'émetteur α considéré.

Nous avons calculé les fonctions $y = F_l(\mu k r_0)$ au voisinage de la valeur de $(\mu k r_0)$ correspondant au premier zéro de la fonction de Bessel $I\left(l + \frac{1}{2}\right)$ (1).

Pour déterminer le rayon nucléaire nous avons employé les grandeurs expérimentales λ_{α_0} et E_{α_0} (constante de désintégration et énergie de la raie fondamentale α_0). Avec une valeur r_0 choisie arbitrairement on calcule $\frac{1}{k r_0 \operatorname{tg} \alpha_0}$ et on lit sur le graphique $y = F_l(\mu k r_0)$ la valeur de $(\mu k r_0)$ correspondante.

On peut alors connaître μ et calculer λ_{α_0} théorique par l'équation 6 *a*). On corrige la valeur de r_0 choisie jusqu'à ce que λ_{α_0} théorique soit égale à λ_{α_0} expérimental (2).

Nous avons ensuite calculé l'intensité théorique de la raie α_1 (ou ce qui est équivalent $\frac{\lambda_{\alpha_1} \text{ théorique}}{\lambda_\alpha \text{ total expérimental}}$) en calculant les équations 6 avec la valeur de r_0 déterminée par la raie fondamentale.

Enfin notons que le facteur $2\omega_0$ de l'exponentielle se calcule facilement en développant l'expression $(\alpha_0 - \sin \alpha_0 \cos \alpha_0)$ en fonction de $x = \cos \alpha_0 = \left(\frac{mv^2 r_0}{4e^2 Z}\right)^{1/2}$. On obtient alors :

$$2\omega_0 = 2x\left[\frac{\pi}{2} - 2x + \frac{x^3}{3} + \frac{x^5}{5} + \ldots\right]. \tag{7}$$

Les deux premiers termes de ce développement donnent l'approximation de $e^{-2\omega_0}$ utilisée dans la formule de Gamow.

Nous donnons dans le tableau I les valeurs moyennes de la grandeur $(\mu k r_0)$ pour $l \leqslant 3$ et dans les figures 1 et 2 la représentation graphique des fonctions $y_{l=0}$ et $y_{l=2}$.

(1) Pour les émetteurs α pairs-pairs on doit prendre $F_l = 0$ pour la raie fondamentale et $F_l = 2$ pour la raie α_1 (voir chap. IV).

Pour $l = 2$ les fonctions S, C, H et K sont les suivantes :

$$S_2 = (3M^2 - 1)\,;\ C_2 = -3M\,;\ H_2 = 3M(2M^2 - 1)\,;\ K_2 = (6M^2 - 1).$$

Le terme Q_2 peut être calculé par l'expression :

$$Q_2 = \frac{\varkappa + 10\,\mu\,M - 6 \operatorname{tg} \alpha_0}{\varkappa + 10\,\mu\,M + 6 \operatorname{tg} \alpha_0}.$$

(2) Un choix de r_0 trop grand entraîne λ_{α_0} calculé $< \lambda_{\alpha_0}$ expérimental. Après deux ou trois essais on obtient r_0 avec trois décimales significatives.

Tableau I (1)

l	1er zéro de la fonction $I\left(l+\frac{1}{2}\right)$	$(\mu k r_0)$ moyen
0	π	2,98
1	4,50	4,27
2	5,77	5,48
3	7,00	6,65

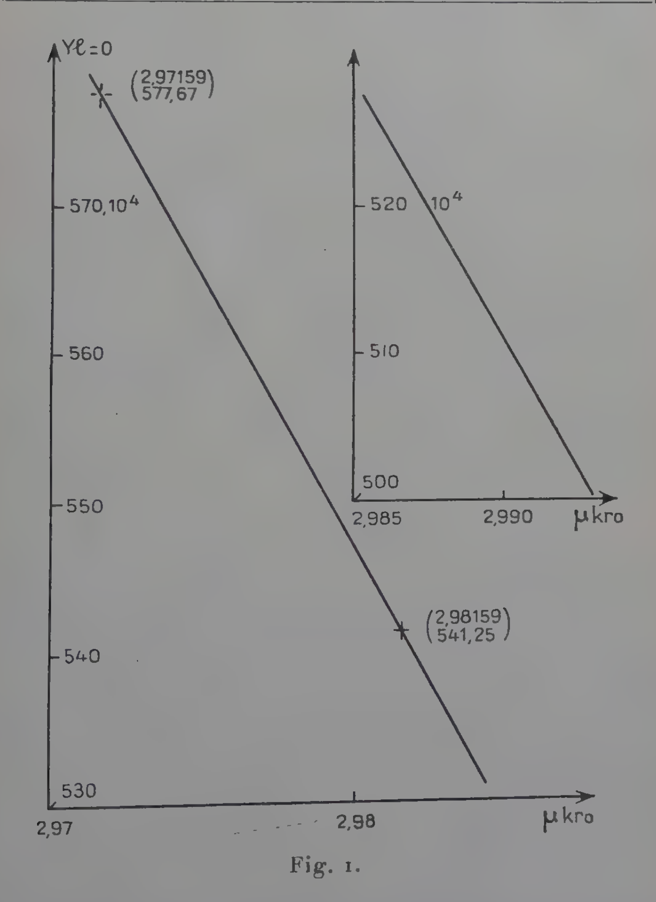


Fig. 1.

(1) La grandeur $\mu k r_0$ varie très peu pour un l donné d'un émetteur à l'autre. Pourtant les calculs exigent qu'on la détermine avec quatre décimales significatives.

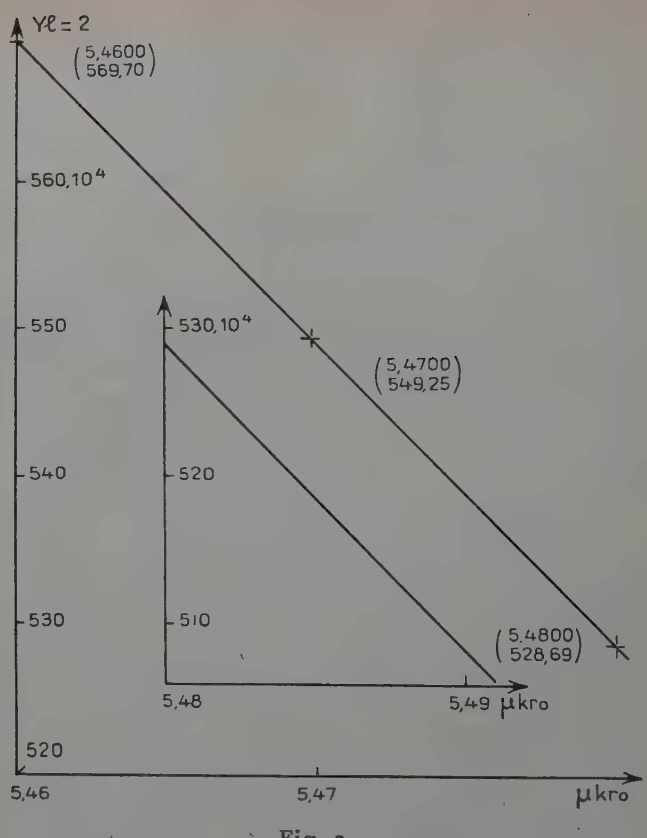


Fig. 2.

Influence théorique du moment angulaire sur la probabilité d'émission. — Dans toutes les théories, à l'exception de celle de Preston, un moment angulaire $l \neq 0$ de la particule α diminue la constance de désintégration du facteur Q_l. Dans la formule de Preston, par contre, le moment angulaire intervient par le facteur Q_l d'une part et par l'augmentation du facteur P d'autre part. Nous avons calculé dans le tableau II l'influence du moment angulaire sur la constante de désintégration dans le cas général où elle est exprimée par Q_l et dans le cas de la théorie de Preston où elle est donnée par l'expression $\frac{P_l Q_l}{P_{l=0}}$ [1].

[1] Ce tableau se réfère à la raie α_0 du Ra ($E_\alpha = 4\,777$ KeV) mais reste valable pour tous les noyaux lourds et les énergies comprises entre 4 et 6 MeV.

TABLEAU II

l	Q_l	$\frac{P_l Q_l}{P_{l=0}}$
0	1	1
1	0,84	1,65
2	0,60	1,80
3	0,38	1,59
4	0,12	0,64
5	$\sim$ 0,05	$\sim$ 0,30

REMARQUES. — 1° Dans toutes les théories l'influence du moment angulaire sur la constante de désintégration est faible comparée à celle des variables r_0 et v_α intervenant dans le terme $e^{-2\omega_0}$ (1).

2° La différence essentielle entre les différentes formules et celle de Preston est que pour les premières une augmentation de l entraîne une diminution de la probabilité d'émission, tandis que dans la théorie de Preston la probabilité est augmentée pour $l \leqslant 3$.

3° La probabilité λ_l étant du même ordre de grandeur que λ_{l+2} on peut penser que la transition entre deux niveaux de spins différents de 0 est formée de rayons α ayant tous les moments angulaires compatibles avec les spins et parités des états initial et final : $| J_i - J_f | \leqslant l \leqslant | J_i + J_f |$. Ce fait tendrait à augmenter la probabilité de ces transitions comparativement à celles d'énergie égale où l'un des spins est nul.

Etude des données expérimentales.

Nous ne présenterons pas de manière complète l'étude de la systématique α qui a donné lieu a un grand nombre de travaux (voir par exemple : 9, 52, 47, 16).

1. Relation de Geiger-Nuttal. — En 1911 Geiger et Nuttal (30) ont montré qu'on obtient une courbe continue pour chaque famille radioactive en portant le logarithme de λ en fonction du logarithme du

(1) Par exemple dans le cas de la raie α_0 du Ra on a :

$$d(\log \lambda) = 20 \frac{dr_0}{r_0} + 66 \frac{dv}{v}.$$

Une variation de 10 p. 100 sur le rayon ou de 3 p. 100 sur la vitesse change la constante λ d'un facteur 100.

parcours dans l'air des particules α. Par la suite on a appelé relation de Geiger-Nuttal, celle qui lie l'énergie ou la vitesse des particules α au logarithme de la constante de désintégration (ou de la période).

Le développement en série de la formule 7 permet d'expliquer simplement la relation de Geiger-Nuttal ; on a en effet :

$$(8) \left\{ \begin{aligned} \text{Log}\,\lambda &= \log(PQ_l) - \frac{4\pi e^2 Z}{\hbar}\frac{1}{v} \\ &+ \frac{8e}{\hbar}(mr_0 Z)^{1/2}\left[1 - \frac{1}{6}\left(\frac{mv^2 r_0}{4e^2 Z}\right) - \frac{1}{40}\left(\frac{mv^2 r_0}{4e^2 Z}\right)^2 - \dots\right]. \end{aligned} \right.$$

Pour Z constant le premier et le troisième terme du membre de droite varient peu d'un isotope à l'autre, on a donc en première approximation la relation :

$$\log\lambda = A + B\frac{1}{v} \quad \text{où A et B sont des fonctions de Z.}$$

En reportant le log λ en fonction de $\frac{1}{v}$ on obtient théoriquement une famille de droites ayant Z comme paramètre (voir Kaplan (38)).

Certains auteurs (par exemple Perlman et al. (47)), reportent le logarithme de la période en fonction de l'énergie de désintégration E_α. On obtient alors pour Z constant une famille de courbes continues.

On remarque que presque toutes les périodes des noyaux impairs sont plus grandes que celles qu'on pourrait prévoir de l'étude des émetteurs pairs-pairs.

Ceci a conduit à proposer pour ces transitions un facteur d'interdiction F, représentant le coefficient par lequel il faut multiplier λ_{exp} pour que le point correspondant se place sur les courbes correspondantes des émetteurs pairs-pairs.

Pour les émetteurs pairs-pairs, les isotopes ^{204}Po, ^{210}Po, ^{210}Em, ^{212}Em présentent également un facteur d'interdiction, qu'on interprète comme une influence des nombres magiques $Z = 82$, $N = 126$.

2. Rayons nucléaires. — L'étude des rayons nucléaires, calculés par la théorie de l'émission α a été faite par plusieurs auteurs (Gamow (29), Rosenblum et Valadares (57), Biswas et Patro (11), Kaplan (38), Perlman et Ypsilandis (48)) ont employé la théorie de la particule α préformée et Devaney (23) la théorie de Weisskopf.

Bien qu'en valeur absolue les rayons diffèrent d'une formule à l'autre, leur variation relative en fonction de A par contre est semblable dans toutes les théories.

Ces auteurs ont montré que, pour les émetteurs α pour lesquels le

facteur d'interdiction F = 1, on obtient approximativement la relation :

$$r_0 = aA^{1/3} + b \ (^1)$$

où $aA^{1/3}$ représente effectivement le rayon du noyau final (A étant le nombre de masse) et b une dimension correspondant approximativement au rayon de la particule α.

Pour les transitions α interdites, le facteur d'interdiction se traduit dans le calcul par un rayon anormalement petit.

Nous donnons dans le tableau III le rayon des émetteurs pairs-pairs calculés par la formule de Gamow.

TABLEAU III

Emetteur	A	Rayon $.10^{13}$ cm	Emetteur	A	Rayon $.10^{13}$ cm
Po	200	7,70	Th	228	7,91
Po	202	8,01	Th	230	8,01
Po	204	7,32	Th	232	8,20
Po	206	7,34			
Po	208	7,17	U.	228	7,77
Po	210	7,04	U.	230	7,97
Po	212	7,15	U.	232	8,00
Po	214	7,39	U.	234	8,06
Po	216	7,52	U.	236	8,15
Po	218	7,66	U.	238	8,29
Rn	210	7,17	Pu	232	7,38
Rn	212	7,17	Pu	234	7,83
Rn	216	7,40	Pu	236	8,02
Rn	218	7,76	Pu	238	7,96
Rn	220	7,76	Pu	240	8,00
Rn	222	7,85	Pu	242	8,16
Ra	220	7,54	Cm	238	7,59
Ra	222	7,80	Cm	240	7,98
Ra	224	7,84	Cm	242	7,89
Ra	226	8,00	Cm	244	7,59
Th	224	7,78	Cf	244	7,84
Th	226	7,86	Cf	246	7,66

Sur ces valeurs on peut faire les remarques suivantes :

1° Au voisinage des nombres magiques Z = 82, N = 126 les rayons nucléaires calculés à partir de l'émission α n'obéissent pas à la relation ($aA^{1/3}$).

(1) Il faut remarquer qu'au moment de ces publications on ne connaissait pas suffisamment bien les émetteurs α, isotopes du Pu, Cm et Cf.

2° Pour A constant le rayon d'un noyau formé de Z protons et N neutrons est en général inférieur à celui du noyau $[(Z+1), (N-1)]$.

3° La dispersion des points ne permet pas de tracer une courbe bien définie en fonction de $A^{1/3}$; il semble pourtant, comme l'ont remarqué Rosenblum et Valadares (58) que les rayons nucléaires diminuent en fonction de A pour les noyaux dont $A > 226$.

Remarque sur le facteur d'interdiction F. — Le facteur d'interdiction est défini empiriquement à partir des courbes période-énergie des noyaux pairs-pairs qui satisfont la relation de Geiger-Nuttal. Il est difficile actuellement de donner une explication générale de ce facteur applicable à tous les émetteurs α, mais qualitativement on peut supposer trois causes possibles à cette interdiction :

1° Une liaison particulièrement stable des nucléons pour les configurations comportant 126 neutrons ou 82 protons. Cette stabilité est bien mise en évidence :

a) Par la discontinuité des courbes représentant la relation entre l'énergie de désintégration et le nombre de masse de l'émetteur α au voisinage de $A = 210$ (voir Perlman (47)).

b) Par le fait qu'aucun isotope du Pb n'est émetteur α.

2° Une diminution brusque du rayon nucléaire pour certaines configurations des nucléons à l'intérieur du noyau. Cet effet est probablement lié à la remarque précédente. La barrière de potentiel étant une fonction exponentielle de $r_0^{1/2}$, une diminution de 10 p. 100 sur le rayon, peut entraîner un facteur d'interdiction de l'ordre de 100. On a en effet :

$$d(\log \lambda) = 0{,}434 \frac{4e}{\hbar}(mr_0Z)^{1/2}\frac{dr_0}{r_0} \cong 20\frac{dr_0}{r_0}.$$

Ces deux hypothèses permettraient d'expliquer les facteurs d'interdiction des émetteurs pairs-pairs ^{204}Po, ^{210}Po, ^{210}Em, ^{212}Em et en partie ceux des isotopes de Bi.

Mais le fait que presque tous les émetteurs impairs présentent une période anormalement grande a conduit pour ces isotopes à supposer un facteur d'interdiction supplémentaire dû au temps de formation de la particule α avec le ou les nucléons célibataires.

En particulier pour certains émetteurs impairs-pairs ou pairs-impairs, présentant une structure fine :

(par exemple : ^{231}Pa, ^{227}RdAc, ^{223}AcX, ^{241}Am et ^{239}Th)

la raie la plus énergique est beaucoup plus interdite ($F > 1\,000$) que

certaines raies d'énergie inférieure. Certains auteurs (47, 59) ont même montré qu'il est possible que pour ^{241}Am et AcX la raie fondamentale n'ait jamais été observée.

En conclusion : 1° bien qu'on ait trouvé des explications qualitatives du facteur d'interdiction, il n'a pas été possible jusqu'à présent d'introduire dans la théorie de l'émission α un terme représentant l'influence de la structure particulière de chacun des noyaux sur la constante de désintégration.

2° L'influence de ce facteur d'interdiction sur le calcul du rayon nucléaire ne permet pas, actuellement, d'obtenir effectivement le rayon nucléaire, ou de discuter sa variation en fonction du nombre de masse à partir des données de l'émission α.

Calcul des intensités des raies de structure fine correspondant au premier état excité des émetteurs α pairs-pairs.

L'étude des transitions γ correspondant à la désexcitation du premier état excité par émission α a montré que le spin du premier état excité est égal à 2.

Les spins des états initial et final étant nuls, il s'ensuit que le moment angulaire emporté par la raie de structure fine ne peut avoir qu'une seule valeur. Il est donc possible dans ces cas de calculer les intensités théoriques des raies α_1 en appliquant les formules données pour $l = 2$. Nous avons effectué ces calculs avec les formules de Gamow et de Preston pour mettre en évidence l'influence du moment angulaire, différente pour chacune des théories.

Les constantes adoptées sont les suivantes :

e = charge élémentaire : $4{,}8022 \cdot 10^{-10}$ UES

$\hbar$ = constante de Planck/2π : $1{,}0542 \cdot 10^{-27}$ erg/sec

m_α = masse de la particule α : $6{,}6440 \cdot 10^{-24}$ g

m = masse réduite du système : $\dfrac{m_\alpha}{1 + \dfrac{4}{A}}$

E_α exp = énergie cinétique observée de la particule α.

Pour connaître l'énergie de transition E_α il faut corriger E_α exp des deux facteurs suivants :

a) E_c = énergie nécessaire à la dilatation du cortège électronique, due au changement de charge du noyau. Cette énergie de l'ordre de

32 KeV pour les noyaux lourds a été calculée par la formule de Benoist-Gueutal (8) :

$$E_c = 65{,}3 Z^{7/5} \text{ eV}$$

où Z est le nombre atomique du noyau émetteur.

b) $E_R = (E_\alpha \text{ exp}) \frac{4}{A}$ = énergie de recul du noyau.

L'énergie intervenant dans le calcul est donc :

$$E_\alpha = E_\alpha \text{ exp} \left(1 + \frac{4}{A}\right) + 65{,}3 Z^{7/5}.$$

Les résultats sont résumés dans le tableau IV où nous avons noté :

2e, 3e, 4e colonne : grandeurs expérimentales adoptées :

5e, 6e colonne : intensité théorique de la raie α_1.

7e, 8e colonne : rayon nucléaire calculé à partir de la raie fondamentale.

Tableau IV

Emetteur	$\lambda\alpha$ total se^{-1}	$E_\alpha$exp KeV		Intensité $\frac{I_\alpha}{I_{tot}}$ (p. 100)			$r_0 . 10^{13}$ cm	
				Exp	Gamow	Preston	Preston	Gamow
$^{206}_{84}$Po . .	8,886.10^{-8}	α_0	5 218	96	—	—	8,72	7,34
		α_1	5 064	4	6,5	22		
$^{224}_{88}$ThX .	8,210.10^{-6}	α_0	5 681	95	—	—	9,33	7,84
		α_1	5 448	4,6	3,5	10		
$^{226}_{88}$Ra. .	1,349.10^{-11}	α_0	4 777	93,5	—	—	9,38	8,00
		α_1	4 593	6,5	3,0	8,8		
$^{228}_{90}$RdTh.	1,156.10^{-8}	α_0	5 423	72	—	—	9,34	7,91
		α_1	5 338	28	15	42		
$^{230}_{90}$Io . .	2,711.10^{-13}	α_0	4 682	75	—	—	9,37	8,01
		α_1	4 615	25	15	42		
$^{238}_{94}$Pu. .	2,527.10^{-10}	α_0	5 492	76	—	—	9,37	7,96
		α_1	5 450	24	26	77		
$^{240}_{94}$Pu. .	3,327.10^{-12}	α_0	5 162	76	—	—	9,44	8,00
		α_1	5 119	24	25	73		
$^{242}_{96}$Cm .	4,937.10^{-8}	α_0	6 110	73	—	—	9,32	7,89
		α_1	6 066	27	27	78		

Sur la figure 3 nous avons reporté la grandeur $\frac{\lambda_1 \text{ théor}}{\lambda_1 \text{ exp}} = \frac{I_{\alpha_1} \text{ théor}}{I_{\alpha_1} \text{ exp}}$ en fonction du nombre de masse A de l'émetteur en supposant une erreur de ± 10 p. 100 sur I_{α_1} exp.

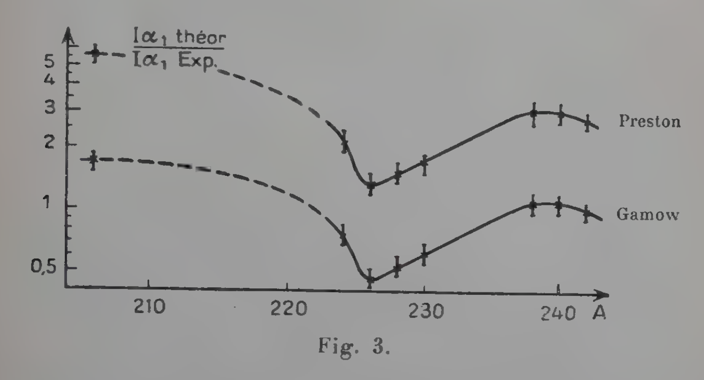


Fig. 3.

Discussion des résultats. — L'examen des deux courbes de la figure 3 conduit aux remarques suivantes. Les intensités des raies sont données par les formules :

Preston : $I_{\alpha_1} \sim \lambda_1 = P_{l=2}\ Q_{l=2}\ e^{-2\omega_0}$

Gamow : $I_{\alpha_1} \sim \lambda_1 = P_{l=0}\ Q_{l=2}\ e^{-2\omega_0}$

Les deux courbes étant parallèles on peut conclure que le rapport $\frac{(P_{l=2}) \text{ Preston}}{(P_{l=0}) \text{ Gamow}}$ est indépendant de l'émetteur considéré. Les calculs montrent même que les facteurs P_l sont pratiquement constants, ce qui s'explique par l'hypothèse admise dans la théorie, que l'état de la particule α à l'intérieur du noyau en présence de la barrière du potentiel est quasi-stationnaire.

2° Les intensités prévues par la formule de Preston sont trois fois plus grandes que celles données par la théorie de Gamow. Ce facteur provient principalement de l'augmentation de la probabilité d'émission P, due au moment angulaire $l = 2$.

3° L'allure des deux courbes (continues en fonction de A, minimum pour A = 226) met en évidence le fait qu'il intervient dans la probabilité d'émission un facteur dépendant de la structure nucléaire dont ne tiennent pas compte ces théories. Il faut noter que, dans le calcul de l'intensité I_{α_1}, ce facteur ne peut pas provenir d'une variation anormale du rayon nucléaire. Nous avons en effet vérifié qu'une variation de 20 p. 100 sur le rayon ne change pas le résultat de manière appréciable.

4° Enfin ces résultats montrent qu'il n'est pas possible, à partir des théories actuelles de l'émission α, de déterminer les transitions de spin entre les niveaux excités par émission α.

CHAPITRE II

TECHNIQUES EXPÉRIMENTALES

Nous avons travaillé avec deux techniques différentes qui donnent des renseignements sur les électrons de conversion :

a) Un spectrographe semi-circulaire à aimant permanent, qui nous a permis, d'une part, de déterminer l'énergie des raies de conversion du Pa en utilisant comme détecteur des émulsions sensibles aux trajectoires individuelles des électrons et, d'autre part, de mesurer les intensités relatives des raies de conversion K et L du rayonnement γ de 350 KeV de l'AcC à l'aide d'un compteur Geiger.

b) Un dispositif de coïncidences, formé de deux compteurs particuliers, qui nous a permis de déterminer de manière précise le nombre d'électrons de conversion par désintégration α pour les transmutations AcC $\xrightarrow{\alpha}$ AcC″, $I_0 \xrightarrow{\alpha}$ Ra, Ra $\xrightarrow{\alpha}$ Rn et RTh $\xrightarrow{\alpha}$ ThX.

Spectrographe semi-circulaire à aimant permanent.

L'avantage principal d'un spectrographe à aimant permanent sur les autres types de spectrographes est de permettre des mesures de longue durée, sans aucune régulation de champ magnétique. On peut par conséquent employer des sources dont l'activité spécifique est très faible.

1. Construction. — L'aimant permanent que nous avons employé a été construit par J. Surugue (78). Nous résumerons rapidement les caractéristiques décrites en détails par le constructeur.

Les pièces polaires de 330 × 450 mm offrent un entrefer de 120 mm. Les bobines d'excitation sont montées en dérivation, alimentées par une tension de 110 V.

Le champ magnétique maxima de 785 gauss est obtenu par un courant de 175 Amp. L'uniformité du champ magnétique a été contrôlée avec précision et trouvée constante (variation inférieure à 1 p. 1 000) dans un rectangle de 330 mm × 120 mm.

Dans l'entrefer est placé une chambre à vide en aluminium, de dimensions égales à celles des pièces polaires ayant une ouverture

de 95 × 150 mm sur un des côtés pour introduire le dispositif de focalisation. L'étanchéité est assurée par un joint torique. Le vide, obtenu par une pompe à diffusion de mercure, est mesuré par une jauge de Penning. La chambre est vidée jusqu'à une pression de 10^{-4} cm de Hg en 4 min.

Nous donnons dans les figures 4 et 5 le schéma des deux dispositifs

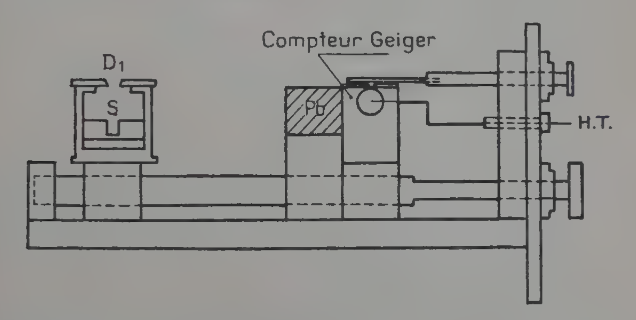


Fig. 4.

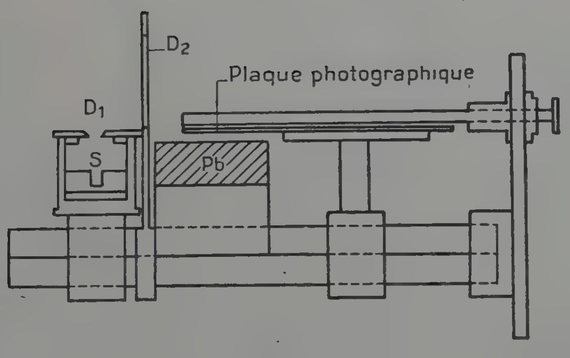


Fig. 5.

de focalisation et quelques remarques sur les détails de construction.

Dans le dispositif 4 l'appareil porte-source se déplace sur une vis micrométrique de 1 mm de pas. L'étanchéité de la vis et de l'écran amovible placé sur le compteur est obtenue par deux joints Wilson.

Dans le dispositif 5 le porte-plaque et l'appareil porte-source sont fixés sur un rail. Leur distance respective variable peut être réglée avant chaque pose.

Compteur Geiger. — Le compteur Geiger de 18 mm de diamètre et de 30 mm de longueur utile était taillé dans un bloc de duralumi-

nium. La fenêtre de 20 mm sur 3 était recouverte d'une feuille d'Al de 5 mg/cm², collée et pressée par une pièce d'aluminium. Cette épaisseur a permis d'éviter la méthode de remplissage différentiel du compteur pour chaque mesure ce qui était nécessaire à cause de la faible période (T = 36 mm) du corps étudié.

Sur la feuille d'aluminium était placé un diaphragme variable qui définissait la largeur de la fente d'utilisation. La distance entre le diaphragme et le bord intérieur du compteur était de 2,2 mm. Le compteur était rempli avec le mélange normal : argon 90 p. 100, alcool 10 p. 100 à une pression de 10 cm Hg.

Plaques photographiques. — Les plaques photographiques étaient des plaques à émulsion sensible aux trajectoires individuelles des électrons, Ilford G5, traitées spécialement par le fabricant pour supporter un séjour prolongé dans le vide. Une étude comparative avec les plaques Guilleminot Superfulgur nous a montré que la sensibilité des émulsions nucléaires est environ 5 fois supérieure à celle des plaques normales pour des électrons de 150 keV.

Pour l'étude des raies de basse énergie nous avons employé des émulsions de 25 μ d'épaisseur, développées à l'azol. Pour les raies de haute énergie nous avons employé des émulsions de 100 μ d'épaisseur développées à l'ID 19 dilué trois fois.

Le premier mode de développement a l'avantage de ne pas donner de voile de surface ; par contre, il donne un contraste moins fort que le développement à l'ID 19.

Porte-source. — Le porte-source est commun aux deux appareils. La largeur du diaphragme D1 peut varier de 0 mm à 10 mm. Le support de la source est constitué par une pièce de métal collée à l'intérieur d'un parallélipipède de plexiglas. Pour les mesures de l'AcC la pièce de métal était l'arrête d'une feuille d'or de 1/10 mm d'épaisseur pliée sur elle-même. Une fois le collage effectué on rectifiait et polissait la pièce de plexiglas de telle manière que la source soit centrée exactement et offre une surface nette.

Pour le Pa le support-source était constitué par la tranche d'une feuille de Be de 1 mm d'épaisseur, collée de la même façon.

Le diaphragme D_2 est une fente verticale de hauteur variable et de 10 mm de large.

2. Conditions d'utilisation. — De nombreux travaux (voir par exemple 46, 49, 32, 2) relatifs aux conditions de focalisation et d'utilisation d'un spectrographe semi-circulaire à champ magnétique uniforme, nous voulons simplement rappelé les résultats, qui nous ont guidés dans le choix des conditions expérimentales ; ces conditions sont variables suivant le détecteur employé.

DÉTECTION PAR PLAQUE PHOTOGRAPHIQUE. — Dans le cas où les électrons sont détectés par une plaque photographique, la forme de la raie et son intensité sur l'axe de symétrie Ox, perpendiculaire au champ magnétique sont fonctions des grandeurs l, X_0, θ où :

l = largeur de la source.
$X_0 = 2\rho(1 - \cos\psi_0)$ = largeur due à l'abération sphérique.
$\theta = \frac{h}{\pi\rho} = \frac{\text{longueur de la source}}{\text{trajectoire des électrons}}$.

La largeur de l'image est donnée par l'expression :

$$Q = l + 2\rho(1 - \cos\psi_0 \cos\theta).$$

On peut montrer que la condition optimum de fonctionnement (intensité maximum et $\frac{\Delta p}{p}$ minimum) et donnée par la relation :

$$2\rho(1 - \cos\psi_0) = l.$$

Ayant admis une source de 1 mm de large et un pouvoir de résolution de 2 p. 100 les relations précédentes donnent pour les conditions optima :

$$\rho = 50 \text{ mm}, \qquad \psi_0 = 8°2.$$

Expérimentalement notre système de focalisation permettait de faire des mesures entre $\rho = 25$ mm et $\rho = 125$ mm.

DÉTECTION PAR COMPTEUR GEIGER. — Dans le cas où le détecteur est un compteur Geiger la forme et la largeur de l'image sont fonction de ψ_0, θ, l, h, L et H où $\theta = \frac{H}{\pi\rho}$ où L et H sont les largeur et longueur de la fenêtre du compteur.

La largeur de la raie vaut alors :

$$Q = l + 2\rho(1 - \cos\psi_0 \cos\theta) + L$$

et le pouvoir séparateur est donné par la même expression qu'auparavant :

$$\frac{\Delta p}{p} = \frac{Q}{2\rho}.$$

Pour un pouvoir séparateur donné (32) les conditions optima de fonctionnement sont :

$$\psi_0 = \left(\frac{2}{7}\frac{\Delta p}{p}\right)^{1/2}; \qquad L = l = \frac{4}{3}\rho\frac{\Delta p}{p}; \qquad h = H = 2\pi\rho\left(\frac{1}{3}\frac{\Delta p}{p}\right)^{1/2}.$$

Dans notre cas particulier, où nous nous proposions de mesurer l'intensité des raies de conversion de AcC (264,6 KeV et 334,7 keV) on peut faire le calcul des conditions optima pour une énergie inter-

médiaire de 300 keV. Avec le champ magnétique utilisé de 302 gauss on obtient, pour un pouvoir séparateur de 0,3 p. 100 :

$$L = l = 0{,}31 \text{ mm},$$
$$h = H = 12 \text{ mm}.$$

Pratiquement notre système nous a permis de travailler avec les conditions suivantes :

$$l = 0{,}2 \text{ mm}, \quad L = 0{,}3 \text{ mm}, \quad h = 12 \text{ mm}, \quad H = 20 \text{ mm}.$$

Le pouvoir séparateur expérimental pour la raie de 264 keV de l'AcC a été trouvé égal à 0,4 p. 100.

Dispositifs de coïncidences α-électrons (1)

Le but de l'expérience a été de mesurer les coïncidences entre les particules α de certaines raies de structure fine et les électrons de conversion dus à la désexcitation du noyau final pour déterminer le nombre d'électrons de conversion par désintégration α.

Expérimentalement on observe une coïncidence entre deux particules détectées par deux compteurs mis en coïncidence si l'intervalle de temps T qui sépare leur émission est inférieur au temps de résolution $\mathcal{T}$ du dispositif de coïncidences. Si l'on considère une source émettant différents rayonnements dont l'un (rayonnement β) est en coïncidence avec un autre (rayonnement α) on peut écrire les équations générales suivantes :

$$N_1 = N(k_{1\alpha} + pk_{1\beta} - k_{1\alpha}pk_{1\beta}) + \mathcal{N}_1$$
$$N_2 = N(k_{2\alpha} + pk_{2\beta} - k_{2\alpha}pk_{2\beta}) + \mathcal{N}_2$$
$$N_c = Np(k_{1\alpha}k_{2\beta} + k_{2\alpha}k_{1\beta}) + N_f + \mathcal{N}_c$$

où N_1, N_2 = nombre de coups/mn comptés dans les compteurs 1 et 2,
N_c = nombre de coups/mn comptés par le sélecteur à coïncidence,
N = nombre de désintégrations/mn de la source,
$k_{1\alpha}$ = probabilité de détecter une particule α dans le compteur 1 est égal au produit :

$\omega\varepsilon t = \frac{1}{4\pi}$ angle solide × efficacité du compteur × transmission de l'écran.

$k_{1\beta}$; $k_{2\alpha}$; $k_{2\beta}$ même définition que $k_{1\alpha}$.

p = nombre de particules β émises pour une particule α.

(1) Ces expériences ont été faites en collaboration avec J. Teillac et C. Victor.

$\mathfrak{N}_1$, $\mathfrak{N}_2$ = tout autre rayonnement détecté dans le compteur 1 ou 2.
$\mathfrak{N}_c$ = coïncidences dues à d'autres rayonnements que les rayonnements α et β.
$N_f = 2N_1N_2\mathfrak{T}$ = coïncidences fortuites.

Le terme $Nk_{1\alpha}pk_{1\beta}$ représente la perte due au fait que deux particules arrivent en même temps dans le compteur 1.

Le terme $Np(k_{1\alpha}k_{2\beta} + k_{2\alpha}k_{1\beta})$ représente les coïncidences vraies que l'on cherche à mesurer.

Appareillage. — Nous avons employé un système de deux « compteurs en croix » dont les axes sont perpendiculaires entre eux et dont

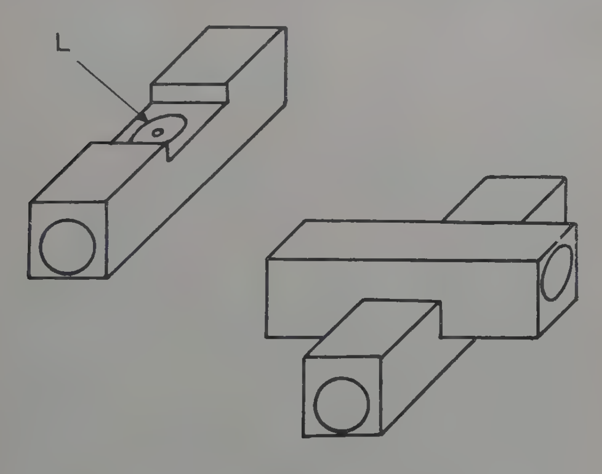


Fig. 6.

deux génératrices sont tangentes, présentant un orifice de 4 mm de diamètre au point de tangence (fig. 6).

La matière constituant la source était placée entre deux disque de cuivre de 1/10 mm d'épaisseur avec un trou central de 3 mm de diamètre. Ces disques étaient introduits entre les deux compteurs dans le logement L, de telle manière que lorsque les deux compteurs étaient en fonctionnement la source se trouvait à 2/10 de mm de la paroi interne des compteurs. Les disques pouvaient être recouverts d'écrans de nature et d'épaisseur variable.

Ce dispositif était placé sous une cloche en verre de grand volume, remplie avec le mélange classique (10 p. 100 alcool, 90 p. 100 argon commercial) a une pression de 10 cm Hg.

Un tel système offre les avantages suivants :

1° L'angle solide de chaque compteur est grand ($\sim 2\pi$) et par

conséquent le nombre mesuré de coïncidences vraies (proportionnel à $\omega_1\omega_2$) est maximum.

2° Les compteurs travaillent dans leur partie centrale ; on n'a donc pas à tenir compte de la diminution d'efficacité aux extrémités.

3° On peut faire des courbes d'absorption pour des épaisseurs d'écran allant jusqu'à 0.

Le fait que l'ionisation produite par des rayons α soit beaucoup plus grande que celle produite par des électrons ou des photons nous a permis, en travaillant dans la région proportionnelle du palier, et

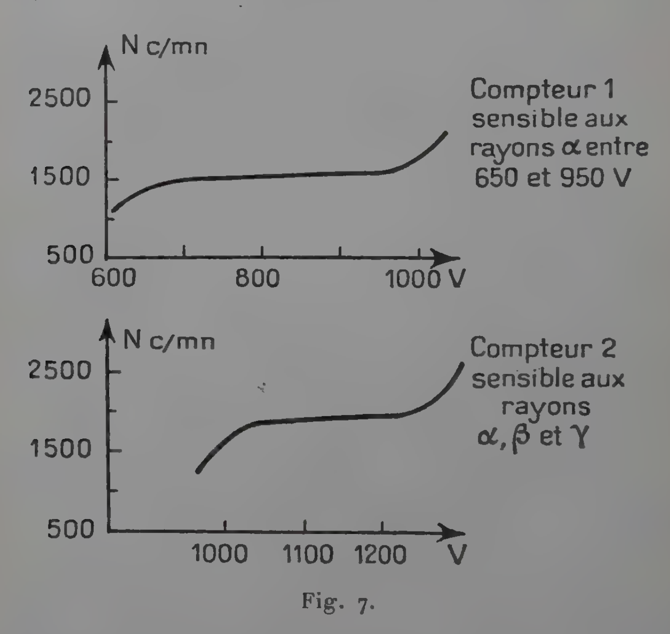


Fig. 7.

en employant un préamplificateur spécial de rendre un des compteurs sensible aux rayons α et insensible aux rayons β et γ.

Le préamplificateur employé avait un gain de 70. Il donnait des impulsions de même hauteur pour chaque particule α et de grandeur comparable à celle produite par un préamplificateur normal de gain 1, relié à un compteur identique travaillant dans la région Geiger.

La figure 7 représente les paliers des deux compteurs en croix placés dans le même mélange gazeux, la source émettant des rayons α, β et γ.

Nous avons vérifié que ces conditions étaient reproductibles d'un remplissage à l'autre.

Pour l'étude des électrons de conversion du rayonnement de 350 keV de l'AcC, dont les énergies sont supérieures à 200 keV nous

avons utilisé un compteur Geiger et un compteur proportionnel fermés, munis de fenêtres minces qui définissaient les angles solides.

Le compteur proportionnel était rempli d'un mélange de 10 p. 100 de CO_2 et de 90 p. 100 d'argon à la pression atmosphérique.

On obtenait avec les rayons α un palier de 450 V dont la pente était inférieure à 1 p. 100.

Techniques de mesure. — Le fait qu'un des compteurs n'est sensible qu'aux particules α simplifie les équations générales représentant les phénomènes détectés. On a alors :

$$N_1 = Nk_{1\alpha} + N_0$$
$$N_2 = N(k_{2\alpha} + pk_{2\beta} - k_{2\alpha}pk_{2\beta}) + \mathcal{N}_2$$
$$N_c = Npk_{1\alpha}k_{2\beta} + N$$

N_0 représente le mouvement propre du compteur 1. Il était dans nos expériences de 10 c/mm environ (donc négligeable comparée à $Nk_{1\alpha} = 10\,000$ c/mm).

N_f peut être déterminé expérimentalement avec une bonne précision, il était en général négligeable comparé aux coïncidences vraies.

La méthode employée pour déterminer le facteur p consiste à étudier la variation du terme $\frac{N_c}{N_1} = pk_2\beta$ en fonction de l'épaisseur et de la nature de l'absorbant placé sur le compteur 2.

L'absorbant utilisé était de l'aluminium. Pourtant dans chaque cas nous avons vérifié que les courbes d'absorption étaient sensiblement équivalentes avec des écrans d'Au ou de Cu, ceci pour bien mettre en évidence que le rayonnement en coïncidence avec les α était composé d'électrons.

Les courbes expérimentales avaient l'allure générale de la figure 8.

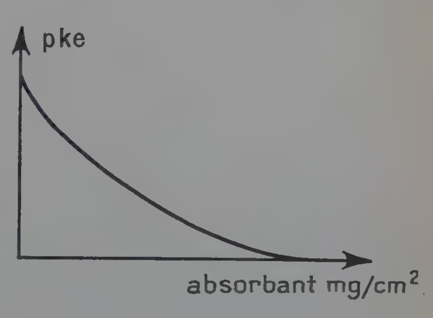


Fig. 8.

L'intersection de la courbe avec l'axe des x donne le parcours en mg/cm² des électrons en coïncidence et permet de déterminer leur énergie.

L'intersection avec l'axe y permet de déterminer p si on connaît ω_2'. En effet pour l'absorbant 0 on a $k_0 = \omega_2\varepsilon_2 t_0$ ou $t_0 = 1$ et $\varepsilon_2 =$ efficacité du compteur pour des électrons : $\varepsilon_2 = 1$.

Etalonnage du système. — Au début de nos expériences nous avons travaillé avec un sélecteur à coïncidences du C. E. A. dont le temps de résolution était fixe, égal à $3 \cdot 10^{-7}$ sec.

Pour mesurer le rendement de coïncidence nous avons monté le dispositif de la figure 9.

Un faisceau canalisé de particules α (source de Po) traverse les deux compteurs. En L est placée une feuille d'Al de 0,17 mg/cm² pour éviter un entraînement éventuel d'un compteur par l'autre. Dans un tel dispositif le rendement de coïncidence est obtenu expérimentalement par $R = \frac{N_c}{N_2}$ où N_2 est le nombre de coups compté par le compteur 2, mouvement proprement déduit.

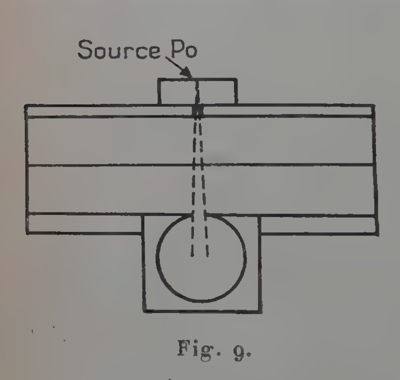


Fig. 9.

Nous avons obtenu $N_1 = N_2$ et $R = 1,00 \pm 0,02$.

Ce résultat nous montre que le temps de résolution de 3×10^{-7} sec est suffisamment grand comparé au temps de réponse des compteurs pour qu'il n'y ait pas de perte sur les coïncidences vraies.

Par la suite nous avons utilisé un sélecteur à coïncidences du C. E. A. dont le temps de résolution $\mathfrak{T}$ est variable entre 10^{-7} et $2 \cdot 10^{-6}$ sec.

Nous avons alors vérifié, en mesurant le nombre de coïncidences vraies en fonction de $\mathfrak{T}$ que le taux de coïncidences était constant à partir de $3 \cdot 10^{-7}$ sec.

La détermination de l'angle solide ω_2 a été faite avec 10 sources de Po d'intensités variables étalonnées avec un électromètre relié à une chambre d'ionisation.

Nous avons obtenu :

pour les compteurs en croix $\omega_1 = \omega_2 = (0,45 \pm 0,02)4\pi$;

pour le compteur Geiger fermé $\omega = (0,28 \pm 0,02)4\pi$.

Nous étudierons dans chaque cas particulier le contrôle de la pureté des sources employées.

Pour faire ces contrôles nous avons suivis l'évolution des sources en fonction du temps. Leur activité α était mesurée au moyen d'une chambre d'ionisation à collection ionique reliée à un amplificateur permettant le comptage individuel des particules α.

La chambre d'ionisation offrait une géométrie identique à celle des compteurs en croix. Pour les sources dont l'activité α était trop intense, l'angle solide utilisé pouvait être réduit d'un facteur 4, 10 ou 100.

L'activité β des sources était contrôlée par un compteur Geiger

classique en Al de 1/10 mm d'épaisseur, dans une géométrie fixe $\left(\omega \cong \frac{1}{10} 2\pi\right)$.

Causes d'erreurs dans la détermination de p. — Les causes d'erreurs systématiques dans la détermination de p sont les suivantes :

a) la précision sur la détermination de ω_2 ;

b) les courbes d'absorption, qui théoriquement peuvent être tracées jusqu'à 0 mg/cm², en pratique n'ont de sens que jusqu'à 0,5 mg/cm². En effet les écrans d'épaisseur inférieure à 0,5 mg/cm² présentent un grand nombre de trous, par lesquels les noyaux de recul pénètrent dans le compteur Geiger et donnent lieu à une coïncidence avec la particule α détectée dans le compteur proportionnel. C'est la raison pour laquelle nous avons extrapolé les courbes à partir de 0,5 mg/cm².

CHAPITRE III

ÉTUDE DES TRANSMUTATIONS : AcC $\xrightarrow{\alpha}$ AcC″ ; Pa $\xrightarrow{\alpha}$ Ac

Transmutation AcC $\xrightarrow{\alpha}$ AcC″.

1. Résultats obtenus par d'autres auteurs. — La structure fine α est connue avec précision. Elle a été étudiée par Rutheford et Wynn Williams (71) puis par M. Curie et Rosenblum (20), Rosenblum, Guillot et Perey (60) et récemment par Vieira et Salgueiro (83). Les résultats de ces derniers auteurs sont les suivants [1] :

$$E_{\alpha_0} = 6\,621 \text{ keV} \qquad I_{\alpha_0} = 82,6 \text{ p. } 100$$
$$E_{\alpha_1} = 6\,274 \text{ keV} \qquad I_{\alpha_1} = 17,4 \text{ p. } 100$$

Il existe peu de travaux sur la mesure directe des rayonnements γ (21). Les renseignements les plus précis proviennent de l'étude des électrons de conversion par spectrographie magnétique β :

Surugue (78) en mesurant les électrons de conversion du dépôt actif de l'An a attribué quatre raies à la transmutation AcC → AcC″, correspondant aux électrons de conversion K, L_I, M_I et N d'une tran-

(1) Les énergies sont celles données par l'expérience sans aucune correction.

Les valeurs des énergies et des intensités des raies α données dans les chapitres III et IV ne correspondent pas toujours aux valeurs publiées dans les travaux originaux, les auteurs nous ayant aimablement communiqué les valeurs les plus récentes admises par eux-mêmes.

sition γ de 349,7 keV. Les intensités respectives étant 0,68 ; 0,27 ; 0,035 ; 0,007.

Li (41) a déterminé le nombre d'électrons de conversion K par désintégration du rayonnement de 349,7 keV en comparant l'intensité photographique de la raie K (264,6 keV) avec celle de la raie F du ThB (147,8 keV). L'activité des sources employées (AcB + dérivé et ThB + dérivés) était mesurée par leur rayonnement α. Les intensités photographiques étaient corrigées de la différence de sensibilité des plaques pour ces deux énergies. Le résultat de Li est :

$$\frac{(\mathrm{Ne})\ 264{,}6}{(\mathrm{Ne})\ 147{,}8} = 0{,}064.$$

En prenant pour l'intensité absolue de la raie F la valeur 0,30 électrons par désintégration on obtient pour le nombre d'électrons K du rayonnement de 350 keV par désintégration d'AcC, la valeur $\frac{\mathrm{Ne}_K}{\mathrm{N}} = 0{,}02$ (¹).

2. Mesure du rapport d'intensité $\frac{\mathrm{Ne}_K}{\mathrm{Ne}_L}$. — Nous avons mesuré le rapport d'intensité des raies de conversion K et L à l'aide du spectrographe β et du dispositif de focalisation utilisant le compteur Geiger.

Les résultats n'ont pu être obtenus avec une grande précision du fait que la mesure au compteur n'a pas permis de séparer la raie L de 334,4 keV de celle de 335,2 KeV provenant de l'AcB (voir 78).

L'intensité des sources du dépôt actif de l'An employées permettait d'effectuer des mesures pendant 1 heure après la fin d'irradiation. On mesurait pour chaque source les raies L et K successivement. Les résultats obtenus étaient corrigés des facteurs suivants :

a) Décroissance de la source.

b) Variation de l'angle solide effectif.

Cette correction est faite en normalisant les intensités mesurées à un rayon de courbure constant.

c) Transmission de la fenêtre du compteur.

D'après les travaux de Chang et Cook (15) et de Saxon (72) le coefficient de transmission d'une feuille d'Al de 5 mg/cm² est d'environ 0,85 pour des électrons de 260 keV et de 0,9 pour des électrons de 330 keV.

Ces valeurs approximatives montrent que la variation du coefficient de transmission pour les deux raies mesurées est inférieur à 10 p. 100.

d) Superposition des raies de 334,4 et 335,2 keV.

(¹) L'intensité absolue de la raie F a été déterminée par plusieurs auteurs (35), (2), (42), (27). La valeur 0,30 adoptée est la moyenne des résultats de Martin et Richardson (42) et de Feather (27).

D'après les travaux de Surugue (78) l'intensité de la raie de 335,2 keV est égale à la moitié de celle de 334,4 keV.

Nous avons tenu compte de cette valeur pour déterminer dans la raie observée le nombre d'électrons attribuables à la raie du rayonnement de 350 keV [1].

La moyenne de cinq mesures faites avec cinq sources différentes a donné pour le rapport $\frac{Ne_K}{Ne_L}$ du rayonnement de 350 keV *la valeur* $5,5 \pm 0,5$.

3. Mesure du nombre d'électrons par désintégration. — Le facteur p, représentant le nombre d'électrons de conversion par désintégration a été déterminé par la technique des coïncidences développée au chapitre précédent.

Les sources étaient constituées par le dépôt actif de l'An en équilibre, déposé sur des feuilles d'Al de 0,17 mg/cm² ou d'Au de 0,2 mg/cm².

Remarquons que dans ce cas les impulsions détectées par le compteur proportionnel sont constituées par 99,7 p. 100 de particules α dues à l'AcC et par 0,3 p. 100 dues à l'AcC′. A la précision de nos mesures les rayons α dus à l'AcC′ peuvent être négligés.

Dans le compteur Geiger les impulsions sont produites par tous les rayonnements du dépôt actif, dont 1 p. 100 environ est dû aux électrons de conversion de l'AcC, le dispositif de coïncidences ne mesure par contre que les coïncidences entre les particules α de l'AcC et les électrons de conversion (et dans une faible proportion les photons correspondant à l'état excité de l'AcC″).

La figure 10 donne la variation du terme $pke = \frac{N_c}{N_\alpha}$ en fonction de l'épaisseur des écrans placés devant le compteur Geiger.

Les électrons des couches K et L sont d'après les relations parcours-énergie (34) complètement absorbés par 66 et 96 mg/cm². Nos courbes ne sont pas incompatibles avec ces chiffres si l'on admet qu'au-delà de 100 mg/cm² les coïncidences sont dues aux rayonnements γ ou X, comme le suggère sur la figure 10 une efficacité plus grande dans Au que dans Al. Ces courbes sont sensiblement différentes pour Au et pour Al. Nous pensons que cette différence (maximum pour 30 mg/cm²) est due à la rétro-diffusion des électrons dans l'absorbant (backscattering) qui est beaucoup plus importante dans Au que dans Al.

[1] Il est peu probable qu'une grande erreur ait été commise à la plaque photographique sur les intensités relatives de ces deux raies, les énergies étant pratiquement égales et l'ordre de grandeur des intensités étant le même.

A l'origine, lorsque le facteur de transmission peut être pris égal à 1 on obtient :

$$\frac{N_c}{N_\alpha} = pke = p\omega = (0{,}82 \pm 0{,}05) \cdot 10^{-2}.$$

L'angle solide ω étant égale à $(0{,}28 \pm 0{,}02)4\pi$ on obtient pour le nombre d'électrons par désintégration la valeur $p = (3{,}0 \pm 0{,}3) \cdot 10^{-2}$.

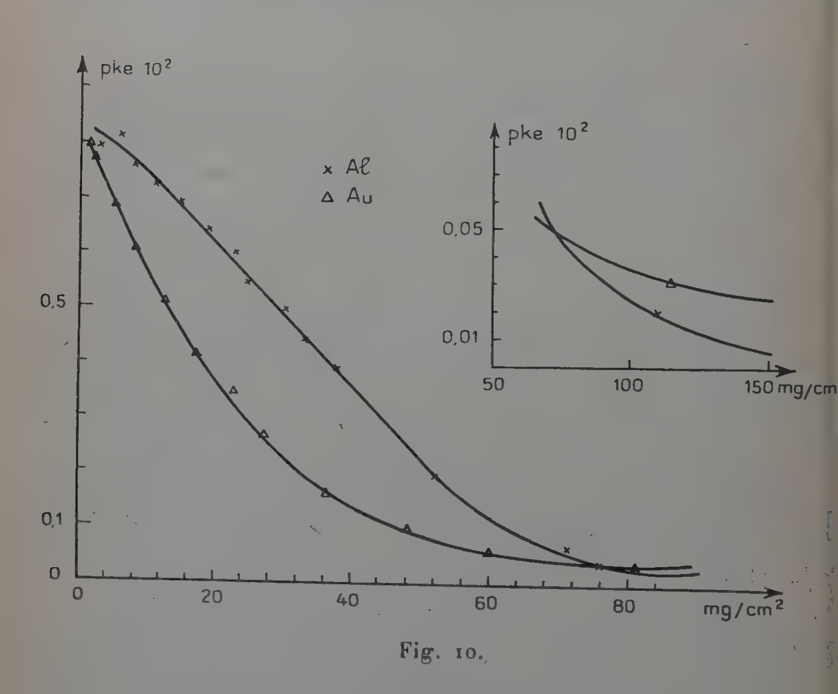


Fig. 10.

Remarques. — 1. La mesure du rapport $\frac{Ne_K}{Ne_L}$ faite avec le compteur Geiger nous paraît plus précise que celle déterminée par comparaison des noircissements d'une plaque photographique. En effet l'intensité de la raie K (étant la raie électronique la plus intense du dépôt actif de l'An) peut être sous-estimée par suite d'une saturation du noircissement [1].

[1] Notons que nous avons testé notre dispositif expérimental en mesurant le rapport des raies F et I du ThB. La valeur trouvée (F/I = 6,7 ± 0,3) est en accord avec les résultats de Arnoult (2) (F/I = 7,3) et Siegbahn (F/I = 7,1) (76).

2. La connaissance du facteur p $(3,0 \pm 0,3 \cdot 10^{-2})$ et celle du nombre d'états excités ($N_{\alpha_1} = 17,4$ p. 100) permet de calculer avec une bonne précision le coefficient de conversion total du rayonnement de 350 keV :

$$\alpha_{tot} = \frac{p}{E_{\alpha_1} - p} = \frac{0,030}{0,174 - 0,030} = 0,21 \pm 0,02.$$

3. En utilisant la valeur $\frac{Ne_K}{Ne_L} = 5,5 \pm 0,5$ on obtient pour le coefficient de conversion dans la couche K :

$$\alpha_K = \frac{\alpha_{tot}}{1 + \frac{1}{Ne_K/Ne_L}} = 0,18 \pm 0,03 \text{ (}^1\text{)}.$$

4. De ces valeurs on peut également déduire le nombre d'électrons K par désintégration :

$$\frac{Ne_K}{N} = \frac{p}{1 + \frac{1}{Ne_K/Ne_L}} = 0,025 \pm 0,003.$$

Ce résultat est en bon accord avec la valeur donnée par Li (41) : $\left(\frac{Ne_K}{N} = 0,019\right)$.

4. Schéma de désintégration. — Nous admettrons donc comme valeurs les plus exactes :

a) nombre d'électrons par désintégration : $p = (3,0 \pm 0,3) \cdot 10^{-2}$;

b) coefficient de conversion dans la couche K : $\alpha_K = 0,18 \pm 0,03$;

c) rapport des intensités K/L : $\frac{Ne_K}{Ne_L} = 5,5 \pm 0,5$;

d) nombre d'électrons K par désintégration : $\frac{Ne_K}{N} = 0,025 \pm 0,003$.

Pour essayer de déterminer la nature et la multipolarité du rayonnement de 350 keV nous avons comparé dans le tableau I nos résultats expérimentaux aux valeurs théoriques des coefficients calculés à partir des tables de Rose et al, (56) et aux valeurs semi-théoriques du rapport $\frac{Ne_K}{Ne_L}$ données par Goldhaber et Sunyar (33).

[1] Le calcul de α_K fait en utilisant la valeur de Surugue $\left(\frac{Ne_K}{Ne_L} = 2,5\right)$ donne un résultat très peu différent : $\alpha_K = 0,15$.

TABLEAU I

	α_K		$\frac{Ne_K}{Ne_L}$	
	Théorique (56)	Expérim.	Théorique (33)	Expérim.
E(2)	0,045	0,18 ± 0,03	1,75	5,5 ± 0,5
E(3)	0,11		0,75	
M(1)	0,28		7,5	

Les valeurs expérimentales ne correspondent à aucune valeur théorique calculée pour des rayonnements purs. D'autre part, remarquons que pour les deux raisons suivantes on peut exclure la possibilité que le rayonnement étudié soit un E(3) :

1° La mesure des coïncidences a été faite avec un appareil dont le temps de résolution est égal à $3 \cdot 10^{-7}$ sec, ce qui montre que la vie moyenne de l'état excité est inférieure ou de l'ordre de $3 \cdot 10^{-7}$ sec. Or, le calcul de la vie moyenne par la formule de Weisskopf (85) donne pour les trois cas envisagés :

$$\mathcal{T} = \begin{cases} 5 \cdot 10^{-10} \text{ sec pour E(2)} \\ 2 \cdot 10^{-4} \text{ sec pour E(3)} \\ 4 \cdot 10^{-13} \text{ sec pour M(1)} \end{cases}$$

2° Le rapport $\frac{Ne_K}{Ne_L} = 5{,}5$ obtenu expérimentalement, est beaucoup plus grand que la valeur semi-théorique $\left(\frac{Ne_K}{Ne_L} = 0{,}75\right)$ qu'on devrait observer pour un rayonnement E(3).

Nous concluons que la transition de 350 keV de l'AcC est soit un rayonnement M(1) soit, ce qui est plus probable, un mélange (M(1) + E(2)).

Dans ces deux possibilités la transition de spin ΔJ est 0 ou 1, sans changement de parité.

Enfin la détermination du spin de l'AcC et de l'AcC″ dans leur état fondamental, peut être déduite des considérations suivantes :

a) Le spin du $^{207}_{82}$Pb a été mesuré (40), (19) et trouvé égal à 1/2 ; la transition AcC″ → Pb étant une transition une fois interdite (28), (43), il s'ensuit que l'état fondamental de l'AcC a le spin 1/2 ou 3/2.

b) Le spin de l'AcC $^{207}_{81}$Tl dont le noyau est constitué par 81 protons est 126 neutrons est certainement dû au proton célibataire. Or, pour les isotopes $^{203}_{81}$Tl et $^{205}_{18}$Tl, qui comprennent aussi un nombre pair de neutrons on a trouvé le spin 1/2 (36).

c) Le modèle nucléaire en couches attribue à AcC″ le spin 1/2 et la parité + et à AcC le spin 9/2 et la parité —.

En admettant que la transition γ est un mélange $M_1 + E_2$ on est conduit au schéma de désintégration de la figure 11.

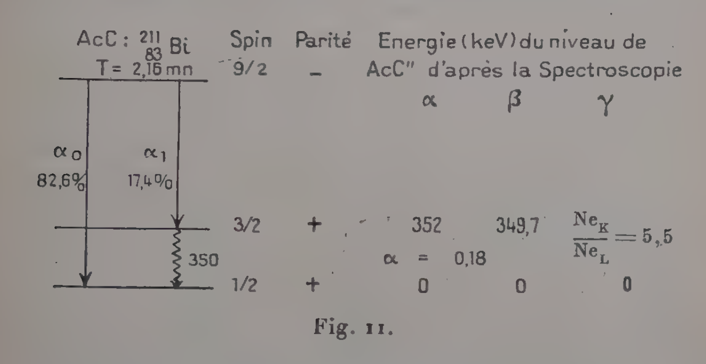


Fig. 11.

5. Remarque sur les mélanges M(1) + E(2). — Comme le montre la théorie de l'émission γ (85) le mélange de deux rayonnements $M(l) + E(l+1)$ est peu probable, le rapport des probabilités $\frac{M(l)}{E(l+1)}$ étant $\geqslant 10^3$.

Pourtant, expérimentalement, on a trouvé plusieurs cas où la détermination du rapport $\frac{Ne_K}{Ne_L}$ et celle du coefficient de conversion α_K conduisent à envisager pour la transition γ un mélange M(1) + E(2). En particulier nous pouvons comparer l'étude présente du rayonnement de 350 keV de l'AcC″ avec celle de la transition de 279 keV du $^{203}_{81}$Tl, pour laquelle Goldhaber et Sunyar (33) ont également conclu à un mélange M(1) + E(2).

Les expériences actuelles ne sont pas assez précises pour déterminer expérimentalement le rapport des probabilités $\frac{M(1)}{E(2)}$.

Mais les valeurs expérimentales de α_K permettent pourtant de dire que la probabilité d'émission M(1) est plus grande que celle de E(2), ce qui est conforme aux résultats théoriques.

En conclusion le désaccord entre les prévisions théoriques et les résultats expérimentaux sur la possibilité de mélange M(1) + E(2) n'est pas définitif et l'étude des corrélations angulaires α-γ et β-γ permettra certainement d'approfondir ce problème.

Etude de la transmutation Pa $\xrightarrow{\alpha}$ Ac.

1. Résultats antérieurs. — La première mesure qui a montré la complexité du schéma de désintégration du Pa et celle de L. Meitner (44) qui a étudié le spectre magnétique des électrons de conversion. Cet auteur a observé 12 raies, dont 9 interprétées ont permis de mettre en évidence trois rayonnements γ de 95, 294 et 323 keV.

La structure fine α a été mise en évidence par Bachelet et Bouissières (4) puis mesurée par S. Rosenblum, E. Cotton et G. Bouissières (61), (18). Les résultats obtenus sont les suivants :

	Energie keV	Intensité p. 100
	—	—
α_0 =	5 042	11
α_1 =	5 002	47
α_2 =	4 938	25
α_3 =	4 838	3
α_4 =	4 720	11
α_5 =	4 660	1 à 3

Scharff, Goldhaber et Mac Know (73) à l'aide d'un compte proportionnel ont mesuré les rayonnements X ($L\alpha$, $L\beta$, $L\gamma$) et mis en évidence un rayonnement γ de 27 keV. Riou (26) avec un compteur à xénon et Falk-Vairant, Teillac, Riou, Victor (24) à l'aide d'un compteur à scintillations, par absorption simple et absorption sélective, ont retrouvé les rayonnements X et de 27 keV et ont mis en évidence deux rayonnements de 300 et 100 keV.

Nous résumons dans le tableau II les résultats de ces auteurs :

Tableau II

Energie	Intensité (nombre de photons par désintégration)
300 ± 10 keV	4 ± 1 p. 100
100 ± 10 »	2,5 ± 0,5 »
27,3 ± 0,6 »	9 ± 2 »
12,3 ± 0,4 » 14,5 ± 1,7 »	} 36 ± 5 »

J. Teillac (80) a étudié les électrons de basse énergie à la chambre de Wilson. Cet auteur a observé trois groupes d'électrons de 24, 36 et 46 keV.

Enfin, notons que Prohaska (51) a étudié par compteurs à scintillations et compteur proportionnel les coïncidences α-γ et α-électrons. Ses résultats sont résumés dans le tableau III (1) :

Tableau III

Coïncidence	Energie des électrons	Nombre d'électrons par désintégration
α — e	300 keV	23 p. 100
α — e	200 »	6,6 »
α — e	60 »	4 »
	énergie des photons :	nombre photons/désintégration
α — γ	87 keV	1,9 p. 100

2. Mesure des électrons de conversion au spectrographe β. — Le spectre des électrons de basse énergie du Pa n'avait pu être mesuré jusqu'à présent en raison de l'activité spécifique très faible de ce corps (période de $3,43.10^4$ *a*). Dans notre cas, nous avons travaillé avec une source de Pa pur de faible intensité (5.10^{-4} millicuries). Elle a été préparée par électrolyse spontanée d'une solution fluorhydrique sur un support de Be de 14 mm × 1 mm (2).

Son épaisseur était ainsi de 0,08 mg/cm² ce qui a permis d'observer des électrons de $\sim$ 13 keV.

Nous avons effectué quatre poses de 15 jours chacune avec des champs magnétiques de 412,6 ; 293,6 ; 198,2 et 134,3 gauss, qui focalisaient aux conditions optima ($\rho = 50$ mm) des électrons d'énergie respective de 275 keV, 120, 80 et 40 keV. L'étalonnage du champ magnétique a été fait dans chaque cas avec les raies F ($H\rho = 1\,388$) et I ($H\rho = 1\,752$) du ThB à une précision de 1 p. 1 000.

Nous donnons dans les tableaux IV et V la liste des raies obtenues et leur interprétation possible.

La précision sur la détermination de l'énergie est de 2 à 4 p. 100 pour les raies peu intenses ($i < 2$) et de 1 à 2 p. 100 pour les autres. Cette précision ne permet pas de distinguer certains sous-niveaux L, M, N. Pour ces niveaux, nous n'avons pas fait figurer d'indice.

Les intensités relatives sont données en prenant arbitrairement le coefficient 100 pour la raie la plus intense de 194 keV. Ces intensités

(1) Le nombre d'électrons par désintégration donné par cet auteur pour les électrons de 300 et 200 keV est incompatible avec les données de la structure fine α et les résultats sur les rayonnements γ.

(2) La méthode de préparation et l'électrolyse ont été effectuées par M. G. Bouissières (12).

TABLEAU IV

Hρ gauss cm	Energie des électrons keV	Intensité relative	Niveau	Energie du rayonnement γ KeV
2 250	* 335	1	L	357
2 195	324	1	M	331
2 140	311	10	L	331
2 080	296	7	M	301
2 015	281	20	L	301
1 997	276	5	K	383
1 884	251	10	K	357
1 825	* 238	5	L	259
1 764	225	60	K	331
1 619	194	100	K	301
1 537	* 177	5	L	198
1 504	* 170	6	—	—
1 412	* 152	10	K	259
1 319	* 135	5	—	—
1 265	125	1	—	—
1 098	* 96,9	2	M	103
1 065	* 91,5	1	K	198
1 030	* 86,1	2	L	102
1 010	* 83,0	1	L	102
996,0	* 80,6	1	N	82,2
973,5	* 77,5	—	M	82,3
870,4	* 62,3	—	L	82,2
839,1	* 59,0	—	M	63,5
790,0	* 52,2	—	M	56,9
751,6	* 47,5	—	L	63,5
724,6	* 44,3	—	L	56,9
696,8	* 41,1	—	L	56,9
666,5	* 37,7	—	L	38,0
621,0	* 32,9	—	M	33,6
576,0	* 28,4	—	M	—
538,0	* 24,9	—	—	38,0
506,8	* 22,1	—	L	—
481,7	* 20,0	—	—	38,0
456,7	* 18,0	—	L	33,6
398,5	* 13,8	—	L	

Raies de conversion de Pa $\xrightarrow{\alpha}$ Ac.

* Raies nouvelles.

sont très approximatives du fait qu'elles sont mesurées visuellement et que, de plus, on ne connaît pas exactement la loi de noircissement des émulsions nucléaires en fonction de l'énergie des électrons (l'efficacité des plaques varie suivant la série de plaques utilisées, le temps de pose et le révélateur employé).

Les raies d'énergie inférieure à 83 keV donnent sur les clichés des noircissements égaux. Le fait que, pour ces raies on a employé des

émulsions de 25 μ et un révélateur different ne permet pas de comparer même approximativement leur intensité avec celle de la raie de 194 keV.

TABLEAU V

Rayonnement γ keV	Raies électroniques trouvées keV
* 383	K
* 357	K, L
331	K, L, M
301	K, L, M
* 259	K, L
198	K, L
102	L_{II}, L_{III}, M
* 82,3	L_{I}, M, N
* 63,5	L_{II}, L_{III}, M
* 56,9	L_{II}, L_{III}, M
38,0	L_{I}, L_{III}, M
* 33,6	L_{I}, M

Rayonnements γ de Pa $\xrightarrow{\alpha}$ Ac.

* Rayonnements nouveaux.

REMARQUES. — 1° Les raies de forte intensité correspondent généralement aux raies données par L. Meitner. Pourtant dans la détermination des Hρ (rapportés au même étalon que L. Meitner) nous obtenons des valeurs supérieures d'environ 2 p. 100.

2° Il existe cinq raies électroniques pour lesquelles nous n'avons pu caractériser le rayonnement γ correspondant. En particulier les raies de 24,9 et 20,0 keV peuvent être les raies de conversion N et M, du rayonnement γ de 27 keV, mais la raie de 20 keV peut également correspondre à la conversion dans la couche L_{II} du rayonnement γ de 38,1 keV.

3° Le rayonnement de 27 keV, qui est probablement un dipôle électrique, doit donner une raie électronique intense de ~ 7 keV (conversion dans la couche L). Nous n'avons pu mettre en évidence cette raie, en raison de l'absorption et de la diffusion dans la source, très importantes dans ce domaine d'énergie.

3. Schéma de désintégration. — *a*) COMPARAISON ENTRE LES RAIES γ ET LES DONNÉES DE LA STRUCTURE FINE α. — Dans le tableau VI figurent les niveaux de $^{227}_{89}$Ac déduits de la structure fine α et ceux obtenus par l'étude des électrons de conversion.

TABLEAU VI

Spectrographie magnétique (Energie en keV).

Niveaux	α	β
5	391	383
4	329	331
3	208	198
2	107	102
1	40	38
0	0	0

On voit que pour chaque niveau donné par la structure fine α on a trouvé un rayonnement γ correspondant.

D'autre part, la mise en évidence du rayonnement γ de 27 keV très intense permet de supposer qu'il existe un niveau à 27 keV du niveau fondamental (o') et d'interpréter les rayonnements de 358 et 301 keV comme étant dus aux transitions (5-o') et (4-o'). On est alors conduit au schéma de niveaux de la figure 12.

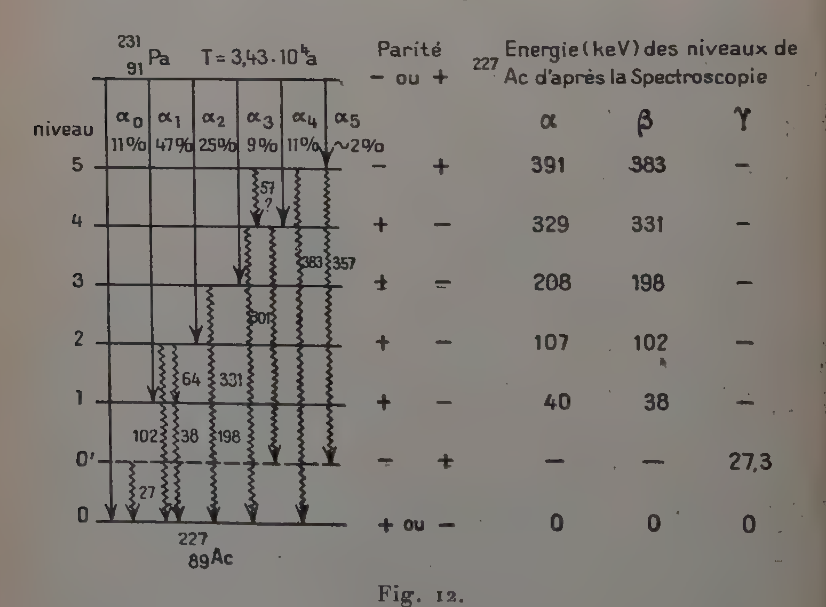


Fig. 12.

b) NATURE DES RAYONNEMENTS ET PARITÉ DES ÉTATS EXCITÉS DE L'AC. — Pour essayer de préciser la nature électrique ou magnétique et la multipolarité des rayonnements observés, nous avons comparé les

valeurs expérimentales (intensité des photons ; rapport d'intensités des raies K : L et $L_I : L_{II} : L_{III}$) avec les valeurs théoriques de Rose (56) et Gellmann (31).

1° *Rayonnement de 27 keV.* — L'intensité de ce rayonnement (9 ± 2 photons par 100 désintégrations) permet de calculer l'ordre de grandeur de la probabilité totale de cette transition par désintégration pour des rayonnements E(1), E(2), M(1) en utilisant les coefficients de conversion théoriques, par la formule :

$$p_t = 0{,}09\ (1 + \alpha).$$

On obtient les valeurs suivantes :

$$p_t = \begin{matrix} 0{,}3 & \text{pour} & E(1) \\ 4{,}5 & \text{pour} & E(2) \\ 5 & \text{pour} & M(1) \end{matrix}$$

Comme il est vraisemblable qu'il n'existe qu'une seule transition γ de 27 keV la probabilité totale d'émission ne peut être que < 1 ; on peut donc conclure que le rayonnement de 27 keV est un E(1) [1].

2° *Rayonnements de 38, 64 et 102 keV.* — Le rapport des intensités des raies électroniques $L_I : L_{II} : L_{III}$ montre que ces rayonnements sont des quadrupoles électriques.

3° *Rayonnement de 198 keV.* — Le rapport des intensités $\frac{K}{L}$ permet de conclure que ce rayonnement est également un E(2). En effet, les valeurs théoriques de $\frac{K}{L}$ sont respectivement égales à 4,5 pour E(1) ; 0,33 pour E(2) et 6,4 pour M(1) (Valeur expérimentale $\frac{K}{L} = 0{,}4$).

3. *Rayonnements de 301 et 331 keV.* — Les raies électroniques K et L de ces rayonnements étant très intenses, on peut conclure avec certitude qu'ils proviennent du niveau 4 du schéma de la figure 12. D'autre part, les mesures de spectrographie γ montrent que la raie γ de 301 keV est beaucoup plus intense que celle de 331 keV. Par contre, les raies électroniques de conversion sont du même ordre de grandeur (K et L du rayonnement de 301 keV deux fois plus intenses que celles du rayonnement de 331 keV). La conclusion de ces faits expérimentaux est que la transition de 301 keV est beaucoup plus probable que celle de 331.

Pour caractériser la nature de ces rayonnements, nous pouvons remarquer que :

a) ces rayonnements ne peuvent pas être des E(1) car la faible valeur du coefficient de conversion ($\alpha_{tot} = 0{,}02$) entraînerait une grande intensité γ en contradiction avec les mesures de Riou ;

[1] Il est intéressant de comparer cette transition à celle de 50 keV du RAC, pour laquelle on a également conclu à un E(1).

b) la multipolarité de ces rayonnements ne peut être supérieure à 2 puisque l'émission de ces rayonnements est plus probable qu'une cascade de plusieurs rayonnements faisant intervenir les niveaux d'énergie intermédiaires ;

c) ces rayonnements sont donc, soit des E(2), soit des M(1) ou M(2) ;

TABLEAU VII

Détermination de la multipolarité des rayonnements γ *de* Pa → Ac.

Energie de la raie γ (keV)	Méthode d'observation	Intensité	Valeurs expérimentales déduites	Nature de la raie
383. . .	*sp*	K(5)		E_1 ou M(2)
357. . .	*sp*	K(10) ; L(2)	$\frac{K}{L} \cong 5$	M(1)
331. . .	*ab* *sp*	(300 + 330) (4 ± 1) K(50), L(10) M(1)	$\frac{K}{L} \cong 5$	M(2)
301. . .	*ab* *sp*	(300 + 330) (4 ± 1) K(100) ; L(20) ; M(7)	$\frac{K}{L} \cong 5$	M(1)
259. . .	*sp*	K(10) ; L(5)	$\frac{K}{L} \cong 2$	M(1)
198. . .	*sp*	K(2) ; K(5)	$\frac{K}{L} \cong 0{,}4$	E(2)
102. . .	*sp*	$L_{II}(4)$; $L_{III}(4)$ $M_1(2)$	$L_I + L_{II} : L_{III}$ 50 : 50	E(2)
82. . .	*sp*	$L_I \cong M_I$; N		ou M(1) M(2)
64. . .	*sp*	$L_{II} \cong L_{III}$; M_I	$L_I + L_{II} : L_{II}$ 50 : 50	E(2)
57. . .	*sp*	$L_{II} \cong L_{III}$; M_I	$L_I + L_{II} : L_{III}$ 50 : 50	E(2)
38. . .	*sp*	$L_{II} \cong L_{III}$; M_I	$L_I + L_{II} : L_{III}$ 50 : 50	E(2)
27. . .	*ab*	9 ± 2		E(1)

Méthode d'observation : *ab*, mesure d'absorption ; *sp*, mesure par spectrographie β.

d) le rapport d'intensité des raies K et L $\left(\frac{Ne_K}{Ne_L}=5\right)$ et le fait que la transition de 301 keV est beaucoup plus intense que celle de 331 permettent de conclure que le rayonnement de 301 keV est un M(1) et celui de 331 un M(2) ;

e) la conclusisn précédente se trouve vérifiée en admettant, comme nous l'avons fait, que le rayonnement de 301 keV correspond à la transition des niveaux $4 \rightarrow 0'$ et que le rayonnement de 27 keV est un E(1).

5° *Rayonnements de 357 et 383 keV.* — Les mêmes raisons que celles développées pour les rayonnements de 301 et 331 keV permettent de conclure que le rayonnement de 357 keV est un M(1). Par contre, celui de 383 keV peut être soit un E(1) soit un M(2).

Le résumé des discussions précédentes est donné dans le tableau VII.

Dans la figure 12 nous avons noté les parités possibles des niveaux de Ac compatibles avec la nature des rayonnements observés.

Conclusion. — La complexité de la structure fine α et du spectre des électrons de conversion rend difficile une interprétation complète du schéma de désintégration. En particulier, il faut remarquer que :

1° Le rayonnement de 57 keV peut correspondre à la transition des niveaux 5-4, mais l'énergie de 57 keV ne correspond pas exactement à la différence des niveaux 5 et 4 déduits des autres mesures.

2° Nous n'avons pu interpréter de manière satisfaisante les rayonnements de 33,6, 82 et 259 keV.

3° Il n'est pas exclu que, comme pour ^{241}Am et AcX (cf. p. 14), la transition α entre les niveaux fondamentaux du Pa et de Ac n'aie jamais été observée et que le niveau noté dans la figure 12 0 soit en réalité un niveau excité de 27 keV. Un travail en cours sur les coïncidences α-γ et γ-γ (24) permettra peut-être de résoudre ce problème.

CHAPITRE IV

ÉTUDE DES TRANSMUTATIONS :

$$\mathrm{Io} \xrightarrow{\alpha} \mathrm{Ra}\ ;\ \mathrm{Ra} \xrightarrow{\alpha} \mathrm{Rn}\ ;\ \mathrm{RTh} \xrightarrow{\alpha} \mathrm{ThX}$$

Introduction. — Les transitions Io → Ra, Ra → Rn et RTh → ThX peuvent être schématisées par la figure 13.

La désintégration α présente une raie intense de structure fine qui conduit au premier état excité du Ra (68 keV) du Rn (185 keV) et de Th X (84,3 keV).

Il existe pour l'Io et probablement pour le Ra et le RTh d'autres raies de structure fine mais d'intensité très inférieure à α_1.

La confrontation des résultats expérimentaux sur les radioéléments artificiels dont l'émission β (33), (74) conduit à des noyaux pairs-pairs a montré que dans presque tous les cas le premier état excité avait un spin égal à 2.

Nous avons entrepris, par la méthode des coïncidences, la mesure du nombre d'électrons de conversion par désintégration ce qui nous a permis de vérifier que pour les émetteurs α étudiés le spin du premier état excité vaut également 2.

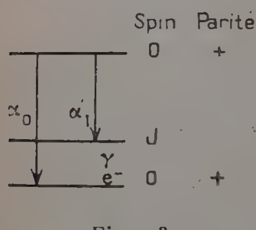


Fig. 13.

Remarquons que le fait que les états initial et final ont le spin 0 et la parité + exclut la possibilité d'une transition γ magnétique entre l'état intermédiaire obtenu par émission α et l'état final. En effet les règles de sélection sur le changement de parité accompagnant une transition α ou γ de moment angulaire l sont les suivantes :

émission α : $(-1)^l$
émission d'un multipole électrique : $(-1)^l$
émission d'un multipole magnétique : $(-1)^{l+1}$

Dans le cas du schéma considéré le moment angulaire l de la particule α et celui du rayonnement γ sont tous deux égaux à J ; et le changement de parité correspondant aux deux transitions est identique, donc égale à $(-1)^J$.

D'autre part, nos expériences permettent dans tous les cas étudiés d'éliminer la possibilité que les rayonnements γ soient d'un ordre polaire supérieur à 2. Le fait d'avoir mesuré des coïncidences avec un système dont le temps de résolution est de $3 \cdot 10^{-7}$ sec montre que la vie moyenne de l'état excité est inférieure ou de l'ordre de $3 \cdot 10^{-7}$ sec.

Or le calcul des vies moyennes des états excités se désintégrant par émission d'un rayonnement électrique donne pour les énergies considérées :

$$\mathfrak{T} < 10^{-7} \text{ sec pour un } E(2)$$
$$\mathfrak{T} \simeq 10^{-3} \text{ sec pour un } E(3).$$

Nous discuterons donc les résultats expérimentaux en fonction des deux possibilités pour le rayonnement γ : soit E(1), soit E(2) ce qui donne pour l'état intermédiaire soit le spin 1 et la parité — soit le spin 2 et la parité +.

Transmutation $I_0 \xrightarrow{\alpha} Ra$.

1. Résultats obtenus par d'autres méthodes. — Une étude de la structure fine des rayons α a été faite par Rosenblum, Valadares et Vial (62) en 1948. Ces auteurs ont mis en évidence trois raies α d'énergies et d'intensités suivantes [1] :

	Energie keV	Intensité p. 100
$\alpha_0 =$	4 682	75
$\alpha_1 =$	4 613	24
$\alpha_2 \cong$	4 500	< 1

Les rayonnements γ ont été étudiés par Ward (84) qui mit en évidence deux rayonnements de 68 et 190 keV.

I. Curie par absorption simple (22) et M. Riou par absorption sélective (55) précisèrent l'énergie des quanta et l'intensité des différents rayonnements. Les résultats obtenus par ces auteurs sont les suivants :

Nombre de photons pour 100 désintégrations :

	Intensité : I. Curie	Intensité : M. Riou
Rayonnement L	11	9 ± 2
68 keV	0,85	$0,5 \pm 0,15$
140 keV	0,35	$0,3 \pm 0,1$ (140 et 240 keV)
240 keV	0,05	

Récemment, Rasetti et Booth (53), d'une part et Bouissières, Falk-Vairant, Riou, Teillac et Victor (14), d'autre part, ont mesuré à l'aide d'un cristal de NaI et d'un photomultiplicateur les rayonnements γ émis par une source d'Io soigneusement purifiée de ses dérivés. Leurs résultats en bon accord avec ceux de M. Riou et de I. Curie, sont donnés dans le tableau I.

L'étude des électrons de conversion a été faite à la chambre de Wilson par Teillac (81) qui a mis en évidence des électrons de 48 keV interprétés comme étant dus à la conversion dans la couche L du rayonnement γ de 68 keV.

Par la technique des émulsions photographiques sensibles aux traces individuelles d'électrons Albouy, Faraggi, Riou, Teillac (1), d'une part, Jarvis et Ross (37), d'autre part, ont retrouvé ce rayonnement.

(1) Dans un travail en cours, Rosenblum (63) a mis en évidence une raie à environ 250 keV de la raie fondamentale.

TABLEAU I

Rasetti et al.		Bouissières et al.	
Energie keV	Intensité absolue, nombre de photons par 100 désintégrations	Energie keV	Intensité relative I = 100 pour les photons de 67 keV
14 ± 1	11,7	15 ± 1	2 000 ± 300
68 ± 1	1,05	67 ± 2	100
142 ± 2	0,14	150 ± 3	12,5 ± 2
255 ± 3	0,05	200 ± 15	∼ 0,8
		254 ± 5	3 ± 1

En particulier, Jarvis et Ross, dont le travail est simultané au nôtre (25) ont dénombré 24 électrons de conversion pour 100 désintégration, et montré que le rapport entre les électrons de conversion L et M égale 3. Enfin Rosenblum et Valadares (64) ont mesuré à l'aide d'un spectrographe β quatre raies électroniques d'énergie 48,6 keV, 51,8, 63,0 et 66,6 keV interprétées par ces auteurs comme étant les raies de conversion L_{II}, L_{III}, M et N d'un rayonnement de 67.8 keV.

2. Mesure du nombre d'électrons par désintégration. — L'Io est le premier corps que nous avons étudié avec notre système de compteurs en croix. L'expérience a été faite en faisant travailler les deux compteurs dans la région Geiger.

La source était préparée à partir d'une solution de nitrate d'Io-Th contenant 9,1 p. 100 d'Io, purifiée en dérivés, mise à notre disposition par Mme I. Curie. Le nitrate était dissous dans l'alcool et mélangé à une solution de collodion. Nous obtenions ainsi des sources de 0,3 mg/cm² d'épaisseur, donnant 5 000 à 10 000 c/mn dans chaque compteur.

Nous avons effectué deux sortes de mesures d'absorption :

a) MESURE « D'ABSORPTION SYMÉTRIQUE ». — Des écrans variables de même nature et de même épaisseur sont placés de chaque côté de la source. Nous avons alors mesuré la variation du nombre de particules comptées dans chaque compteurs et la variation des coïncidences, avec des écrans d'Al et d'Au. Dans ce cas on a les équations :

$$N_1 = N_2 = Nk_\alpha + Npk_e + \mathcal{N}$$
$$N_c = 2Npk_\alpha k_e$$

d'où :

$$pk_e = \frac{N_c}{2Nk_\alpha}.$$

(La grandeur Nk_α a été déterminée par des mesures indépendantes : chambre d'ionisation et comparaison avec une source de Po préalablement étalonnée).

b) MESURE « D'ABSORPTION DISYMÉTRIQUE ». — Entre la source et le compteur 1 est placé un écran d'Au de 6,3 mg/cm² qui arrête tous les électrons de conversion en laissant passer plus de 50 p. 100 des rayons α. Du côté du compteur 2 sont placés des écrans variables d'Au ou d'Al.

Dans ce cas les équations sont identiques à celles développées au chapitre précédent et on a :

$$pk_e = \frac{N_c}{N_1}.$$

Ces différentes mesures ont donné par extrapolation à l'origine la valeur :

$$(pk_e)_0 = (10 \pm 1) \text{ p. } 100$$

et $(k_e)_0$ étant égal à ω_0, $(0{,}45.4\pi)$, $p = (22 \pm 3)$ p. 100.

Cette valeur a été contrôlée avec le dispositif plus précis de coïncidences entre compteur proportionnel et compteur Geiger, que nous avons construit par la suite. Pour l'absorbant 0 nous avons obtenu alors :

$$p = (23 \pm 1) \text{ p. } 100.$$

C'est la valeur que nous retiendrons dans la discussion du schéma de désintégration.

3. Schéma de désintégration. — Les différents résultats expérimentaux permettent de déduire le schéma de désitégration de la figure 14.

REMARQUES. — 1° Comme nous l'avons constaté (p. 42) le rayonnement de 68 keV ne peut être qu'un multipôle électrique E(1) ou E(2). La mesure des probabilités d'émission de photons et d'électrons de conversion montre que ce rayonnement est un E(2). On peut en effet calculer les grandeurs suivantes :

a) Coefficient de conversion total [1] :

$$\alpha_{tot} = \frac{P_e}{P_\gamma} = 36 \pm 15.$$

b) Coefficient de conversion dans la couche L :

Les mesures d'intensité de Jarvis et Ross et celles de Rosenblum et Valadares donnent pour le rapport d'intensité des raies électroni-

(1) Nous avons pris pour P_γ la moyenne des valeurs de I. Curie et M. Riou.

ques L : (M + N) la valeur 2,8 ± 0,5, ce qui nous permet de calculer le coefficient α_L :

$$\alpha_L = \frac{36 \pm 15}{1 + \frac{1}{2,8}} = 26 \pm 14.$$

Enfin, les intensités relatives des raies électroniques $L_I : L_{II} : L_{III}$ confirment également l'hypothèse d'un rayonnement E(2).

Nous donnons dans le tableau II les résultats déduits des expériences, et les grandeurs théoriques correspondantes, calculées par Gellman et al. (31) :

TABLEAU II

	α_L	L_I	L_{II}	L_{III}
Expérimental . . .	26 ± 14	0	52	48
Théorique E(2) . .	50 ± 20	2	55	43
Théorique E(1) . .	0,3 ± 0,1	40	30	30

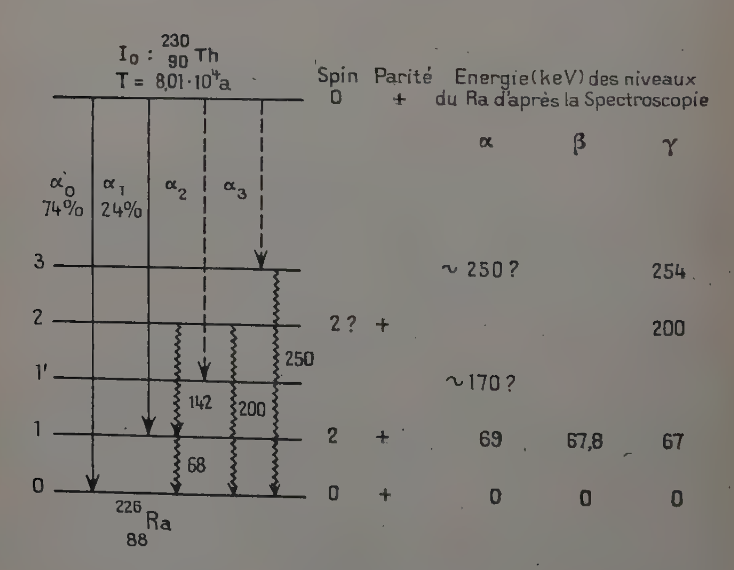


Fig. 14.

2° Rasetti et Booth ont montré que les rayonnements de 142 et 68 keV étaient émis en coïncidence. D'autre part, nous avons trouvé (14) un rayonnement γ de 200 ± 15 keV. Ces faits mettent clairement en évidence un niveau excité du Ra à 210 ± 10 keV.

3° Les grandes difficultés expérimentales intervenant dans la mesure de la structure fine α de l'Io ne permettent pas actuellement de discuter les désaccords entre la spectroscopie α et γ pour les niveaux 1′ et 2.

Transmutation Ra $\xrightarrow{\alpha}$ Rn.

1. Résultats obtenus par d'autres méthodes. — L'étude de la structure fine du Ra a été faite par plusieurs auteurs (65), (66), (5), (48), (3). G. Bastin-Scoffier (5) a mis en évidence trois raies α d'énergies et d'intensités suivantes :

	Energie keV	Intensité p. 100
	—	—
$\alpha_0 =$	4 777	93,5
$\alpha_1 =$	4 593	6,5
$\alpha_2 =$	4 130	0,17

Asaro et Perlman (3) dans une étude récente n'ont pu mettre en évidence la raie α_2 et concluent que son intensité est certainement inférieure à 0,1 p. 100. Par contre, ces auteurs trouvent pour l'intensité de la raie α_1 5,7 ± 0,3 p. 100 en bon accord avec la valeur donnée par Bastin-Scoffier.

Les rayonnements γ n'ont été étudiés qu'une fois par Stahel et Johner (77) au moyen d'une chambre d'ionisation.

Ces auteurs ont mis en évidence un rayonnement de 188 keV et le rayonnement K du Rn. Les difficultés expérimentales (pureté des sources et efficacité de la chambre d'ionisation) ne permettent pas de connaître par ces expériences les intensités de ces rayonnements.

Les raies électroniques de conversion ont été mesurées en 1951 par Cork et al. (17) qui ont trouvé les raies de conversion K, L_{II}, L_{III}, M, N d'un photon de 185,6 keV avec des intensités relatives respectivement égales à 0,24, 0,24, 0,16, 0,20 et 0,16.

2. Mesure du nombre d'électrons par désintégration. — Les expériences sur le Ra et le RTh ont été faites avec les compteurs en croix dont l'un C_1 travaillait dans la région proportionnelle et ne comptait que les rayons α, et l'autre C_2 dans la région Geiger.

Dans ces conditions le facteur $pk_e = \frac{N_c}{N_\alpha}$ peut être connu indépendamment de l'intensité de la source, dans le cas où elle est strictement purifiée des dérivés émetteurs α.

Le Ra était purifié par M. G. Bouissière en utilisant la méthode de la dithizone (13). Les sources, pratiquement sans matière, étaient déposées sur des supports de mica de 0,5 à 0,7 mg/cm² et recouvertes d'une goutte d'une solution de chlorure de polyvinyl, qui, une fois séchée, formait une pellicule d'épaisseur inférieure à 0,5 mg/cm². Ce procédé permettait d'éviter le dégagement de Rn.

Pour déterminer le taux de dérivés au moment des mesures, nous avons suivis l'évolution des sources dans le temps à l'aide de la chambre d'ionisation et du compteur Geiger. Les premiers contrôles étant effectués toutes les heures puis de jour en jour pendant un

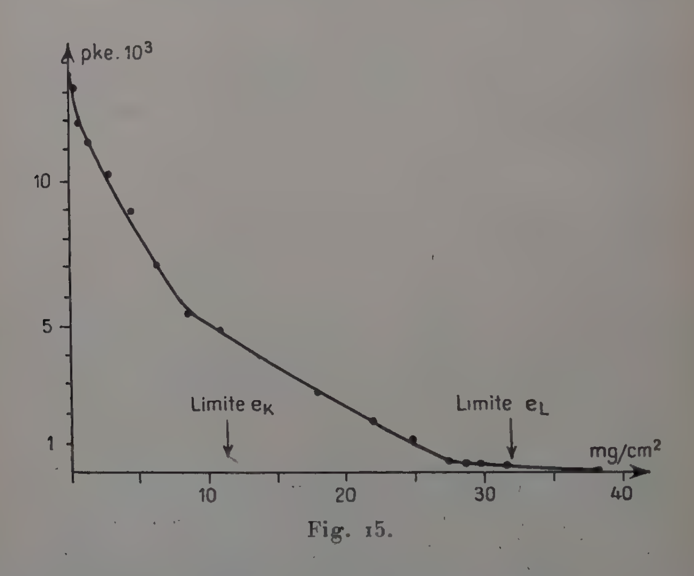


Fig. 15.

mois, nous avons pu vérifier que les sources employées contenaient moins de 1 p. 100 de dérivés, au moment de la purification, et que la croissance des dérivés correspondaient bien aux courbes que l'on peut calculer.

Les mesures de coïncidences ayant toujours été faites dans les trois premières heures après la purification, la correction due à la croissance des dérivés était inférieure à 5 p. 100.

Nous avons également suivis l'évolution du nombre des coïncidences avec le temps. Ce nombre étant resté constant nous pouvons en conclure que le Rn et le RaA ne présentent pas de structure fine intense. Ceci montre également que, bien que la période du RaC′ soit égale à 10^{-4} sec, nous n'avons pas eu de coïncidences, avec le temps de résolution de 3.10^{-7} sec employé, entre les particules β de RaC et les rayons α du RaC′.

Dans la figure 15 nous avons tracé la variation de pk_e en fonction de l'épaisseur des écrans d'aluminium placés entre le compteur Geiger et la source.

Nous pouvons alors faire les remarques suivantes :

1° La limite d'absorption des coïncidences est au voisinage de 31 mg/cm². Cette limite correspond, d'après les courbes parcours-énergie, à des électrons de 170 keV, que nous pouvons interpréter comme étant les électrons extraits des couches L et M par la désexcitation de niveau de 186 keV ($E_L = 169$ keV ; $E_M = 182$ keV).

2° Les électrons extraits de la couche K ont une énergie $E_K = 186 - 98 = 88$ keV dont le parcours dans Al est d'environ 10,9 mg/cm². Cette limite est assez visible sur la courbe.

Pour l'absorbant o on obtient : $pk_e = (14 \pm 0,2)\ 10^{-3}$ ce qui donne pour p la valeur :

$$p = 0,030 \pm 0,005.$$

3. **Schéma de désintégration**. — Les différents résultats expérimentaux conduisent à la conclusion que la transition de 185 keV est un quadruple électrique. Bien qu'on ne connaisse pas le nombre de photons par désintégration on peut calculer le coefficient de conversion en utilisant les résultats des mesures d'intensité des raies de structure fine α :

$$\alpha_{tot} = \frac{Ne}{N_{\alpha_1} - Ne}$$

où N_e = nombre d'électrons par désintégration (= 0,030) ;
N_{α_1} = nombre de rayons α_1 par désintégration (= 0,065).

On trouve ainsi pour le coefficient de conversion total :

$$\alpha_{tot} = 0,86 \pm 0,2.$$

Les coefficients de conversion théorique sont respectivement égaux à 0,83 pour un E(2) et à 0,08 pour un E(1).

Les intensités relatives des raies $\frac{K}{L}$ mesurées par Cork et al. confirment ce résultat. En effet la valeur expérimentale trouvée par ces auteurs est égale à 0,4 alors et que les valeurs théoriques sont : 0,35 pour E(2) et ~ 4 pour E(1).

Nous donnons dans le tableau III les différents résultats expérimentaux et théoriques et dans la figure 16 le schéma que l'on peut déduire actuellement des diverses expériences sur les rayonnements α et électroniques du Ra.

Tableau III

	Expérimental	Théorique	
		E_2	E_1
α_{tot}	0,86 ± 0,2	0,83	0,08
$L_I : L_{II} : L_{III}$	0 : 0,4 : 0,6	0,1 : 0,5 : 0,4	0,6 : 0,23 : 0,17
$\frac{Ne_K}{Ne_L}$	0,4	0,35	4

$^{226}_{88}Ra$ T = 1622 a	Spin	Parité	Energie (keV) des niveaux du Rn d'après la streptoscopie α	β	γ
	0	+			
α_0 93,5 %, α_1 6,5 %, α_2			~ 600	666 ?	—
666 ?	2	+	185	185,6	188
185,6	0	+	0	0	0
$^{222}_{86}Rn$					

Fig. 16.

Remarques. — Bien qu'il existe un désaccord entre Bastin-Scoffier et Asaro et Perlman sur l'existence de la raie α_2, il est probable que le deuxième niveau excité se situe au voisinage de 600 keV. Comme l'ont fait remarquer Rosenblum et Valadares (67) il existe dans le travail de Cork et al trois raies électroniques non interprétées par les auteurs, dont deux (573 keV et 651 keV pourraient provenir de la conversion dans les couches K et L du Rn d'un rayonnement γ de 666 keV).

Transmutations RTh $\xrightarrow{\alpha}$ ThX.

1. Résultats obtenus par d'autres auteurs. — La structure fine de RTh a été mise en évidence par Rosenblum et Chamié en 1932 (68) puis étudiée par Rosenblum, Valadares et Perey (69).

Elle se compose de deux raies :

	Energie keV	Intensité p. 100
$\alpha_0 =$	5 423	72
$\alpha_1 =$	5 338	28

Riou (54) par la technique de l'absorption sélective a mesuré un rayonnement γ de 84,3 ± 1,2 keV d'intensité 2,1 ± 0,7 p. 100 et le rayonnement L du Ra (I = 7 ± 1,5 p. 100. D'autre part, Bouissières, Falk-Vairant, Riou, Teillac et Victor (14) par la technique du compteur à scintillations ont mis en évidence trois rayonnements γ nouveaux d'énergies et d'intensités relatives suivantes (en prenant 100 pour le rayonnement de 84 keV) :

Energie keV . .	84	133 ± 2	172 ± 4	216 ± 3
Intensité relative .	100	14	10	17

Les électrons de conversion ont été étudiés au spectrographe β par L. Meitner (45), J. Surugue (79) et récemment par Rosenblum et Valadares (70). Ces derniers ont trouvé les raies de conversion du rayonnement de 84,4 keV, dont les intensités relatives sont respectivement :

L_{II}	L_{III}	M_{II}	M_{III}	N	O
0,40	0,34	0,15	0,09	0,05	0,01

2. Mesure du nombre d'électrons par désintégration. — Le RTh était purifié au moment de la mesure d'après une méthode décrite par G. Bouissière (82).

Les sources, dont les intensités variaient de 1 000 c/mn à 10 000 c/mn dans l'angle 2π, étaient déposées sur mica de 0,9 mg/cm².

En général les sources étaient recouvertes d'une goutte de chlorure de polyvinyle de 0,5 mg/cm², mais, pour étudier les coïncidences dans le domaine des absorbants d'épaisseur faible, nous avons utilisé des sources nues recouvertes d'une feuille de 0,17 mg/cm² d'Al.

L'activité β des sources était nulle au début des expériences, et l'activité α dues aux dérivés a été déterminée, d'après leur croissance en fonction du temps, inférieure à 0,5 p. 100 de l'activité du RTh au moment de la purification.

L'expérience a été faite dans des conditions analogues à celles du Ra. L'évolution des sources en fonction du temps est commandée par la période du ThX (3,64 J).

Comme pour le Ra on peut effectuer les mesures pendant quelques heures après la purification sans être gêné par les dérivés.

La valeur de pk_e à l'origine donne la valeur : $p = 0,25 \pm 0,01$ électron par désintégration.

3. Schéma de désintégration. — Nos résultats confirment ceux de Rosenblum et Valadares qui ont conclu des intensités relatives des raies de conversion L_{II} et L_{III} que le rayonnement de 84,4 keV est un quadrupole électrique.

On peut calculer le coefficient de conversion α_{tot} à l'aide de nos résultats et de ceux de Riou :

$$\alpha_{tot} = \frac{P_e}{P_\gamma} = \frac{0{,}25 \pm 0{,}01}{0{,}021 \pm 0{,}007} = 12 \pm 6.$$

Et le coefficient α_L en tenant compte des intensités données par Rosenblum et Valadares $\left(\frac{Ne_L}{Ne_{tot}}\right) = 0{,}74$.

On obtient alors : $\alpha_L = 12 \pm 6 \times 0{,}74 = 8{,}9 \pm 5$.

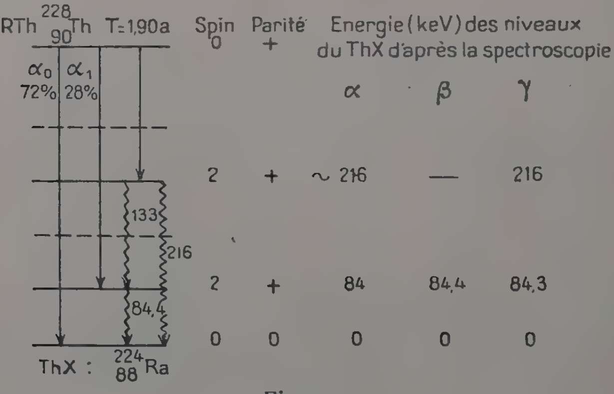


Fig. 17.

Les valeurs théoriques de Gellman et al donnent les coefficients α_L suivants : pour E(1) $\alpha_L = 0{,}015$; pour E(2) $\alpha_L = 10$.

En supposant que ce rayonnement est un E(2) on peut également calculer le coefficient α_L à partir de l'intensité du rayonnement L ($7 \pm 1{,}5$ p. 100). On a alors :

$$N_{eL} = \frac{0{,}07 . 0{,}0015}{0{,}46} = 0{,}15 \pm 0{,}03$$

où 0,46 est le rendement de fluorescence de la couche L excitée par la conversion interne d'un quadrupole électrique. D'où l'on obtient :

$$\alpha_L = \frac{0{,}15}{2.1 \pm 0{,}7} = 7{,}1 \pm 4.$$

Dans la figure 17 nous donnons le schéma de désintégration du RTh, déduit des différentes données expérimentales.

Remarques. — 1° Nous pensons que le rayonnement γ de 133 keV correspond à une transition entre un niveau à 216 keV et le niveau de 84 keV (¹).

2° Si cette interprétation est correcte, on peut conclure des intensités relatives des rayonnements γ de 133 et 216 keV que le niveau de 216 keV a le spin 2 et la parité +.

3° La détermination de la corrélation angulaire pour le rayonnement de 84,4 keV α-γ a été faite par Kilchitsky (39), Beling (7) et récemment par Battey (6). Les résultats obtenus ne permettent pas aux auteurs de conclure avec certitude sur le schéma de spin donné dans la figure 7. Battey, Madansky et Rasetti montrent que leurs résultats seraient interprétables par les valeurs de spin 1-2-1, avec $l=2$ pour chacune des transitions. Ces auteurs remarquent pourtant que certaines causes d'erreurs peuvent déformer la courbe de corrélation angulaire.

RÉSUMÉ ET CONCLUSIONS

Nous avons étudiés les électrons de conversion émis dans les transmutations α : AcC → AcC″, Pa → Ac, Io → Ra ; Ra → Rn, RTh → ThX.

Les techniques employées ont été :

1° un spectrographe semi-circulaire à aimant permanent dont le détecteur était constitué soit de plaques photographiques, soit d'un compteur Geiger ;

2° un dispositif de coïncidences, travaillant avec des compteurs Geiger particuliers qui permettait :

a) de placer la source devant la région utile du compteur sans paroi intermédiaire ;

b) d'utiliser pour chacun des compteurs un angle solide voisin de 2π ;

c) de ne rendre sensible un des compteurs qu'aux rayons α.

Les résultats obtenus sont les suivants :

$AcC \overset{\alpha}{\rightarrow} AcC''$. — Nous avons étudié la transition γ de 350 keV. La mesure du nombre d'électrons de conversion par désintégration ($p = 3{,}0 \pm 0{,}3 . 10^{-2}$) et celle du rapport des intensités des raies K et L $\left(\frac{N_{eK}}{N_{eL}} = 5{,}5 \pm 0{,}5\right)$ permettent de conclure que ce rayonnement

(¹) M. Rosenblum nous a communiqué qu'il existe vraisemblablement une raie de structure fine α conduisant au niveau de 216 keV, mais qu'il n'existe certainement pas de raie conduisant à un hypothétique niveau de 172 keV.

est formé d'un mélange de dipôles magnétiques et de quadrupôles électriques.

A partir des données expérimentales et théoriques, nous avons proposé un schéma complet de désintégration de AcC, comprenant les spins et parités des niveaux.

Pa $\xrightarrow{\alpha}$ *Ac.* — La mesure des raies électroniques de conversion a mis en évidence douze rayonnements γ dont sept étaient inconnus jusqu'alors.

L'étude de nos résultats et leur comparaison avec ceux de la spectroscopie γ, d'une part, et de la structure fine α, d'autre part, nous a permis de déterminer la multipolarité de chacun de ces rayonnements.

Nous avons montré, en particulier, que le rayonnement de 27 keV est certainement un dipôle électrique.

Le schéma de désintégration de Pa a été discuté en fonction des résultats expérimentaux. Mais nous avons dû remarquer que la complexité des rayonnements émis, rend difficile dans l'état actuel de nos connaissances, une description complète et satisfaisante du schéma de désintégration.

Io $\xrightarrow{\alpha}$ *Ra*, *Ra* $\xrightarrow{\alpha}$ *Rn* ; *RTh* $\xrightarrow{\alpha}$ *ThX*. — Nous avons déterminé pour ces trois émetteurs α le nombre d'électrons de conversion par désintégration, correspondant à la désexcitation du premier niveau excité par la raie de structure fine α_1.

Les résultats obtenus (Io : $p = 0{,}23 \pm 0{,}01$; Ra : $p = 0{,}03 \pm 0{,}005$; RTh : $p = 0{,}25 \pm 0{,}01$) nous ont permis de montrer que les rayonnements γ correspondants sont des quadrupôles électriques.

Cette conclusion vérifie pour les noyaux lourds émetteurs α la règle empirique, déjà connue pour les émetteurs β selon laquelle le premier état excité des noyaux pairs-pairs a un spin égal à 2.

Théories de l'émission α. — Nous avons discuté les théories existantes de l'émission α dans le but de confronter les résultats expérimentaux et théoriques.

En particulier, nous avons donné une méthode de calcul permettant de résoudre de manière relativement simple les équations de Preston. Nous avons calculé par les formules de Gamow et de Preston :

1° L'influence théorique du moment angulaire emporté par la particule α sur la probabilité d'émission.

2° Les intensités théoriques des raies de structure fine correspondant au premier état excité des noyaux pairs-pairs.

Cette étude nous a conduits aux conclusions suivantes :

a) Les intensités théoriques des raies de structure fine ne sont, en général, pas vérifiées par l'expérience.

b) Il s'ensuit qu'il n'est pas possible de déterminer, à partir des intensités relatives des raies de structure fine données par l'expé-

rience, les transitions de spin entre les niveaux excités des noyaux formés par émission α.

c) La théorie de l'émission α devra être reconsidérée en tenant compte de la structure nucléaire, dont les effets apparaissent, dans le cadre des théories actuelles, sous la forme d'un facteur d'interdiction qui n'a pas encore reçu d'interprétation satisfaisante.

d) Il ne paraît pas possible, par les théories actuelles, de déterminer de manière effective les rayons nucléaires et d'étudier leur variation en fonction du nombre de masse, à partir des données de l'émission α.

(Laboratoire Curie, Institut du Radium, Paris).

BIBLIOGRAPHIE

1. G. Albouy, H. Faraggi, M. Riou, J. Teillac. — *C. R. Acad. Sc.*, 1949, **229**, 435.
2. R. Arnould. — *Ann. de Phys.*, 1939, **12**, 318.
3. F. Asaro, I. Perlman. — *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 129.
4. Bachelet,. G. Bouissières. — *J. Phys. Rad.*, 1946, **7**, 151.
5. G. Bastin-Scoffier. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **233**, 945.
6. J. Battey, L. Madansky, F. Rasetti. — *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 182.
7. J. Beling, B. Feld, I. Halpern. — *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 155.
8. P. Benoist-Gueutal. — *C. R. Acad. Sc.*, 1953, **236**, 691.
9. A. Berthelot. — *J. Phys. Rad.*, 1942, **8**, 17.
10. H. A. Bethe. — *Rev. Mod. Phys.*, 1937, **9**, 163.
11. S. Biswas, A. P. Patro. — *Mod. J. Phys.*, 1948, **22**, 539.
12. G. Bouissières, M. Haissinsky. — *Bull. Soc. chim. France*, 1951, **18**, 146 et 557.
13. G. Bouissières, C. Ferradini. — *Ann. Chim. Acta*, 1950, **4**, 610.
14. G. Bouissières, P. Falk-Vairant, M. Riou, J. Teillac, C. Victor. — *C. R. Acad. Sc.*, 1953.
15. C. Chang, S. Cook. — *Nucleonics*, 1952, **10**, 24.
16. M. L. Chaudhury. — *Zeits. f. Phys.*, 1952, **133**, 561.
17. J. M. Cork, C. E. Branyan, A. E. Stoddard, H. B. Keller, J. M. Leblanc, W. J. Childs. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 681.
18. E. Cotton. — *Ann. Phys.*, 1951, **6**, 481.
19. A. Crooker. — *Can. Journ. Res.*, 1936, **14 A**, 115.
20. M. Curie, S. Rosenblum. — *C. R. Acad. Sc.*, 1936, **196**, 159,
21. M. Curie, P. Savel. — *Journ. Phys. Rad.*, 1933, **4**, 457.
22. I. Curie. — *Journ. Phys. Rad.*, 1949, **10**, 381.
23. J. Devaney. — Cité par Weisskopf (85).
24. P. Falk-Vairant, J. Teillac, M. Riou, C. Victor. — A paraître.
25. P. Falk-Vairant, J. Teillac. — *Journ. Phys. Rad.*, 1953, **14**, 67.
26. P. Falk-Vairant, M. Riou. — *Journ. Phys. Rad.*, 1953, **14**, 67.
27. N. Feather, J. Kyles, R. W. Pringle. — *Proc. Phys. Soc.*, 1948, **61**, 466.
28. A. Feingold. — *Rev. Mod. Phys.*, 1951, **23**, 10.

29. G. Gamow, C. Critchfield. — *Theory of Atomics Nucleus*, Clarendon Press, 1949.
30. H. Geiger, J. M. Nuttal. — *Phil. Mag.*, 1911, **22**, 613.
31. H. Gellman, B. A. Griffith, J. P. Stanley. — *Phys. Rev.*, 1952, **85**, 944.
32. C. Geoffrion. — *Rev. Scient. Inst.*, 1949, **20**, 638.
33. M. Goldhaber, A. W. Sunyar. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 906.
34. R. Grégoire. — *Constantes sélectionnées*, Hermann, Paris.
35. Gurney. — *Proc. Roy. Soc.*, 1926, **112**, 380.
36. D. Jackson. — *Zeits. f. Phys.*, 1932, **75**, 223.
37. J. D. Jarvis, M. Ross. — *Proc. Phys. Soc.*, 1951, **64 A**, 535.
38. I. Kaplan. — *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 962.
39. Kilchitsky, Latisheff, Buliginsky. — *Doklady Akad. Nauk. SSSR*, 1949, **64**, 57.
40. H. Kopfermann. — *Zeits. f. Phys.*, 1932, **75**, 363.
41. K. T. Li. — *Proc. Roy. Soc.*, 1937, **156**, 571.
42. D. Martin, H. Richardson. — *Proc. Phys. Soc.*, 1950, **63**, 223.
43. M. G. Mayer, S. A. Moszkowski, L. W. Nordheim. — *Rev. Mod. Phys.*, 1951, **23**, 315.
44. L. Meitner. — *Zeits. f. Phys.*, 1928, **50**, 15.
45. L. Meitner. — *Zeits. f. Phys.*, 1928, **52**, 632.
46. G. Owen. — *Rev. Scient. Inst.*, 1949, **20**, 916.
47. I. Perlman, A. Ghiokso, G. T. Seaborg. — *Phys. Rev.*, 1950, **77**, 26.
48. I. Perlman, T. J. Ypsilantis. — *Phys. Rev.*, 1950, **79**, 30.
49. E. Persico, C. Geoffrion. — *Rev. Scient. Inst.*, 1950, **21**, 945.
50. M. A. Preston. — *Phys. Rev.*, 1947, **71**, 865.
51. C. A. Prohaska. — *U. C. R. L.*, 1951, 1395.
52. M. H. L. Pryce. — *Proc. Phys. Soc.*, 1950, 642.
53. F. Rasetti, Booth. — *Phys. Rev.*, 1953, **91**, 315.
54. M. Riou. — *Ann. Phys.*, 1953, **8**, 535.
55. M. Riou. — *Journ. Phys. Rad.*, 1950, **11**, 185.
56. M. Rose, G. Goertzel, B. Spinrad, J. Harr, P. Strong. — *Phys. Rev.*, 1353, à paraître.
57. S. Rosenblum, M. Valadares. — *C. R. Acad. Sc.*, 1950, **230**, 384.
58. S. Rosenblum, M. Valadares. — *C. R. Acad. Sc.*, 1933, **236**, 196.
59. S. Rosenblum, M. Valadares. — Communication privée.
60. S. Rosenblum, Guillot, M. Perey. — *C. R. Acad. Sc.*, 1936. **202**, 1274.
61. S. Rosenblum, E. Cotton, G. Bouissières. — *C. R. Acad. Sc.*, 1949, **229**, 825.
62. S. Rosenblum, M. Valadares, J. Vial. — *C. R. Acad. Sc.*, 1948, **227**, 1088.
63. S. Rosenblum. — Communication privée.
64. S. Rosenblum, M. Valadares. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **232**, 501.
65. S. Rosenblum. — *C. R. Acad. Sc.*, 1932, **195**, 317.
66 S. Rosenblum, M. Valadares. — *C. R. Acad. Sc.*, 1949, **228**, 385,
67. S. Rosenblum, M. Valadares. — *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **235**, 711.
68. S. Rosenblum, Chamie. — *C. R. Acad. Sc.*, 1932, **194**, 1154.
69. S. Rosenblum, M. Valadares, M. Perey. — *C. R. Acad. Sc.*, 1949, **228**, 385.
70. S. Rosenblum, M. Valadares. — *C. R. Ac. Sc.*, 1952, **235**, 238.
71. E. Rutherford, Wynn Williams. — *Proc. Roy. Soc.*, 1931, **133**, 351.

72. Saxon. — *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 639.
73. G. Scharff-Goldhaber, Mac Known. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 123.
74. G. Scharff-Goldhaber. — *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 587,
75. T. Sexl. — *Zeits. f. Phys.*, 1933, **81**, 163.
76. K. Siegbahn. — *Thèse*, 1944.
77. E. Stahel, W. Johner. — *Journ. Phys. Rad.*, 1934, **5**, 97.
78. J. Surugue. — *Ann. Phys.*, 1937, **8**, 484.
79. J. Surugue, Tsien-San-Tsiang. — *C. R. Acad. Sc.*, 1941, **213**, 172.
80. J. Teillac. — *C. R. Acad. Sc.*, 1949, **229**, 650.
81. J. Teillac. — *C. R. Acad. Sc.*, 1948, **227**, 1088.
82. C. Victor, J. Teillac, P. Falk-Vairant, G. Bouissières. — *Journ. Phys. Rad.*, 1952, **13**, 565.
83. G. Vieira, L. Salgueiro. — *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **234**, 1765.
84. A. C. Ward. — *Proc. Camb. Phil. Soc.*, 1939, **35**. 322.
85. V. Weisskopf, J. Blatt. — *Theoretical Nuclear Phys.* (Willey Sons N. Y. 1952).

Note ajoutée à la correction des épreuves.

Depuis le dépôt du manuscrit, les articles suivants ont paru sur le sujet du présent travail :

1) *Emission α :*

J. O. Rasmussen, S. G. Thompson and A. Ghiorso. — *Phys. Rev.* **89**, 1953, 33.
J. Devaney. — *Phys. Rev.*, **91**, 1953, 587.
F. Asaro, I. Perlman. — *Phys. Rev.*, **91**, 1953, 763.
F. Asaro. — *Thèse U.C.R.L.*, 2180.

2) ^{231}*Pa :*

J. Teillac, M. Riou, P. Desneiges. — *C. R. Acad. Sc.*, **237**, 1953, 41.
R. L. Moore. — *Thèse A.E.C.U.*, 2757, 1953.

3) *Io :*

G. Valladas. — *C. R. Acad. Sc.*, **236**, 1953, 2230.
G. M. Temmer et J. M. Wyckoff. — *Phys. Rev.*, **92**, 1953, 913.
S. Rosemblum, M. Valadares, J. Blandin-Vial. — *C. R. Acad. Sc.*, **238**, 1954, 1523.
P. Falk-Vairant, J. Teillac, G. Valladas, P. Benoist. — *C. R. Acad. Sc.*, **238**, 1954, 1409 et **238**, 1954, 1656.

4) *RTh :*

J. O. Newton, B. Rose. — *Phil. Mag.* **45**, 1954, 58.
F. Asaro, F. Stephens et I. Perlman. — *Phys. Rev.*, **92**, 1953, 1495.

ÉTUDE SUR LA STABILITÉ DE LA RÉGULATION AUTOMATIQUE DES SYSTÈMES A INERTIE DU TYPE THERMIQUE [1]

Par P.-L. DUBOIS-VIOLETTE

AVANT-PROPOS

Un régulateur procédant, comme c'est presque toujours le cas, par réaction, présente l'avantage de corriger à lui seul les perturbations produites par n'importe lequel des paramètres, dont les variations sont ressenties par la grandeur réglée. C'est ainsi que l'apparition d'une variation de la température d'un four engendre, par le canal du régulateur, une réaction correctrice, indifférente à l'origine de l'accident, sur le débit de combustible, qui fait alors fonction de grandeur de réglage.

C'est d'ailleurs suivant la forme de la réaction que l'on classe les modes de régulation automatique. En dehors de la forme la plus simple et la plus courante consistant en une réaction proportionnelle au déréglage, on utilise en pratique deux autres formes de réaction, résultant, l'une de l'intégration, l'autre de la dérivation par rapport au temps du déréglage.

On ne peut, d'autre part, augmenter indéfiniment l'intensité de la réaction, c'est-à-dire la sensibilité du régulateur, sans diminuer la stabilité du système réglé et provoquer finalement l'amorçage d'oscillations dites de pompage.

Déterminer la valeur de la sensibilité-limite du régulateur et la période des oscillations de pompage, *rechercher la forme la plus favorable de la réaction régulatrice*, constituent trois problèmes essentiels dans l'étude d'un projet de réglage automatique.

Il existe en effet presque toujours en pratique une ou plusieurs sources dominantes de perturbation : dans un échangeur à circulation d'huile, par exemple, la perturbation dominante provient, en général, des variations dans la demande d'huile : c'est le cas des raffineries de pétrole, des fours de cracking, etc. Si l'intensité de ces

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques (18 février 1953).

variations est trop importante, compte tenu de la sensibilité-limite du régulateur, ou bien si la fréquence de ces variations est, en moyenne, trop élevée en regard de la fréquence des oscillations de pompage, l'efficacité du régulateur peut être nettement insuffisante. Il convient, dans un tel cas, de prévoir la mise en place d'un deuxième régulateur asservissant automatiquement la grandeur de réglage au débit d'huile, ce qui revient à corriger individuellement l'influence propre du facteur de perturbation dominante. Mais cette solution entraîne une complexité plus grande et un prix plus élevé de l'installation régulatrice : on ne doit donc l'adopter qu'après avoir établi sa nécessité, et ceci suppose connue la solution des trois problèmes ci-dessus.

Des réglages difficiles se présentent souvent dans le cas des installations thermiques, car la transmission de la chaleur, en retardant et déformant la correction élaborée par le régulateur, limite l'efficacité et la stabilité de la régulation. Or, il est pratiquement impossible de se livrer, sur de telles installations, à des essais destinés à explorer le domaine de stabilité du réglage projeté, et de résoudre ainsi, par une méthode expérimentale, les problèmes considérés.

C'est la raison pour laquelle nous en avons recherché la solution par une méthode analytique, que nous avons développée en ayant plus spécialement en vue son application aux régulations thermiques.

Après avoir développé les principes généraux de cette méthode (chap. I et II) et l'avoir appliquée à une série d'exemples divers (chap. III), nous avons consacré le chapitre IV à son application aux réglages thermiques.

CHAPITRE PREMIER

STABILITÉ DES CIRCUITS DE RÉGULATION

Le circuit de régulation.

Cette étude intéresse la stabilité des circuits de régulation, constitués par une chaîne fermée comprenant l'installation A, objet du réglage, et le régulateur, opérant par réaction (fig. 1).

L'*installation A* comporte une grandeur à régler θ, considérée comme grandeur de sortie. L'un des paramètres, désigné par x, dont dépend θ, est choisi comme grandeur de réglage et considéré comme grandeur d'entrée de l'installation. C'est par son intermédiaire que

le régulateur doit corriger les écarts entre θ et la valeur de consigne θ_0.

Supposons d'abord le régulateur hors circuit. Lorsque le lien physique qui existe entre θ et x peut être représenté par une équation différentielle dont les coefficients sont indépendants du temps, mais dépendent des divers paramètres de l'installation, la variation relative $\varepsilon(t) = \frac{\Delta\theta}{\theta}$ qui résulte d'une perturbation $\eta(t) = \frac{\Delta x}{x}$ de la grandeur de réglage, est déterminée, à chaque instant, par une équation différentielle que l'on peut mettre sous la forme :

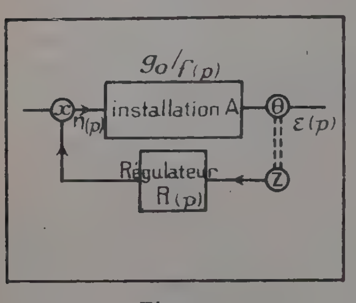


Fig. 1.

$$a_n \frac{d^n\varepsilon}{dt^n} + a_{n-1} \frac{d^{n-1}\varepsilon}{dt^{n-1}} + \ldots + a_1 \frac{d\varepsilon}{dt} + \varepsilon = g_0\eta(t), \qquad (I,1)$$

si l'on suppose $a_0 \neq 0$. Les coefficients a_k et g_0 sont constants au deuxième ordre près en ε, et les transformées de Laplace $\varepsilon(p)$ et $\eta(p)$ vérifient, lorsque l'époque $t = 0$ coïncide avec le début de la perturbation :

$$[a_n p^n + a_{n-1} p^{n-1} + \ldots + a_1 p + 1]\varepsilon(p) = g_0\eta(p). \qquad (I,2)$$

Le polynôme $\frac{f(p)}{g_0} = \frac{1}{g_0}\Sigma a_k p^k$ représente l'*impédance symbolique* de transfert de l'installation. g_0 est la limite vers laquelle tend $\varepsilon(t)_{t\infty}$, quand la perturbation $\eta(t)$ s'identifie à l'échelon unité de Heaviside (5).

Le *régulateur* comprend : un organe d'entrée dont la position est repérée par le paramètre z, un organe de sortie lié au paramètre de réglage x. Son mécanisme est en général correctement représenté par une équation différentielle $\Phi(x(t), x'(t) \ldots, z(t), z'(t) \ldots) = 0$. Une variation relative $\nu(t) = \frac{\Delta z}{z}$ engendre une perturbation $\eta(t) = \frac{\Delta x}{x}$ de la grandeur de réglage, et l'équation différentielle qui relie η et ν est, en première approximation, une équation linéaire dont les coefficients sont indépendants de η et ν. Les transformées de Laplace $\nu(p)$ et $\eta(p)$ satisfont par conséquent à une relation que l'on peut mettre sous la forme :

$$\eta(p) = -R(p)\nu(p) \qquad (I,3)$$

$R(p)$ désignant une fraction rationnelle en p.

L'équation (I,3) ne traduit correctement que les rapports entre des variations relativement faibles η et ν, mais :

1) elle suffit à déterminer les domaines d'instabilité par auto-oscillation du circuit de régulation,

2) c'est par la forme de l'équation (I,3) et non par celle de l'équation $\Phi = 0$ que l'on classe les variétés de régulation utilisées,

3) on s'arrange le plus souvent dans la pratique — par un choix judicieux de la forme de la vanne de réglage par exemple — pour que les coefficients qui figurent dans $R(p)$ soient indépendants des modifications qui peuvent survenir dans le régime de fonctionnement de A, et en particulier de x. Nous appellerons *fonction régulatrice* la fonction de transfert $R(p)$.

Remarquons que la répercussion sur la grandeur réglée θ de la variation $\nu(p)$ est donnée par la relation :

$$f(p)\varepsilon(p) + g_0 R(p)\nu(p) = 0. \qquad (I,4)$$

Les fonctions régulatrices les plus usitées.

Ce sont celles qui correspondent aux réglages par actions proportionnelle, dérivée ou intégrale, ou, plus généralement, à une combinaison de ces trois types d'action :

a) *L'action régulatrice est proportionnelle*, lorsque la fonction régulatrice se réduit à une constante r, que nous appellerons taux de l'action proportionnelle.

b) *L'action régulatrice est dérivée*, lorsque la fonction régulatrice $R(p)$ se réduit à hp, h désignant une constante généralement positive.

c) *L'action régulatrice est intégrale*, lorsque la fonction régulatrice se réduit à $\frac{k}{p}$. La constante k, taux d'action intégrale, est homogène à l'inverse d'un temps.

Nous étudierons donc la stabilité du réglage dans le cas où $R(p)$ est de la forme $r + hp + \frac{k}{p}$. Cette forme ne traduirait plus, de façon correcte, l'action du mécanisme régulateur si la perturbation $\nu(t)$ présentait des variations trop rapides. Mais, en pratique, la densité spectrale des perturbations à corriger permet d'admettre la validité de cette forme.

Equation du circuit de régulation.

L'effet régulateur s'obtient, on le sait, en connectant l'entrée du régulateur à la sortie de l'installation, c'est-à-dire en réalisant la liaison $z = \theta$. Au déréglage $\varepsilon_0(p)$ que l'on aurait observé en l'absence

de régulation, la réaction régulatrice superpose la correction $\varepsilon_1(p)$ donnée par (I,4) et la résultante $\varepsilon(p) = \varepsilon_0(p) + \varepsilon_1(p)$ vérifie donc :

$$[f(p) + g_0 R(p)]\varepsilon(p) = f(p)\varepsilon_0(p). \qquad (I,5)$$

L'équation (I,5) est l'équation du circuit de régulation fermé.

En particulier, un déréglage permanent ε_0 est remplacé, après intervention d'une régulation proportionnelle stable de taux r, par un déréglage résiduel permanent :

$$\varepsilon = \frac{\varepsilon_0}{1 + rg_0}.$$

Le *coefficient de régulation proportionnelle* $1 + rg_0$ est ainsi d'autant plus élevé que r est plus grand.

Si l'on adjoint à l'action proportionnelle une correction intégrale dont la constante de temps $\frac{1}{k}$ est grande devant celles qui caractérisent la réponse propre de l'installation, on vérifie d'après (I,5), que le déréglage résiduel suit sensiblement la loi :

$$\varepsilon = \varepsilon_0 e^{-\frac{kg_0 t}{1+rg_0}}.$$

La perturbation initiale ε_0 est donc progressivement et intégralement corrigée après intervention du réglage intégral, avec une rapidité qui croît en même temps que k.

D'une façon générale la limite $\varepsilon(t)_{t\to\infty}$ est égale à celle de $p\varepsilon(p)_{p\to 0}$, et peut être calculée à partir de (I,5) quand on connaît $\varepsilon_0(p)$. On montre ainsi, par exemple, qu'une perturbation échelon d'amplitude ε_0' de la dérivée $\frac{d\varepsilon}{dt}$, telle qu'une brusque fuite dans un réservoir dont on règle le niveau, est d'autant mieux corrigée par un régulateur à action intégrale que k est plus élevé.

Ces quelques exemples montrent que, dans la mesure où la stabilité du circuit de régulation reste acceptable, il est avantageux d'utiliser des taux de régulation, proportionnelle ou intégrale suivant les cas, aussi élevés que possible.

Stabilité de la régulation.
Critère d'enlacement des racines.

La stabilité du réglage dépend essentiellement du signe des parties réelles des racines de l'équation :

$$F(p) = f(p) + g_0 R(p) = 0. \qquad (I,6)$$

Le réglage est instable dès que l'une de ces parties réelles est positive ou nulle. Dans le cas-limite où l'équation (I,6) admet une solu-

tion imaginaire pure du type $j\omega_0$, la grandeur θ est susceptible d'osciller indéfiniment sur la pulsation ω_0.

Nous ne reviendrons pas sur les méthodes classiques qui permettent de définir le domaine de stabilité des systèmes linaires (4) (6).

Nous nous proposons ici de développer les conséquences que l'on peut tirer d'un critère particulièrement simple de stabilité. Ce critère s'avère commode dans l'hypothèse, adoptée ici et conforme à la pratique industrielle, d'une installation stable par elle-même. Nous montrerons qu'il peut être un guide efficace dans le choix et le dosage optimum des diverses classes de réglage. Il s'énonce ainsi :

Théorème. — Soient $A(\omega)$ et $B(\omega)$ les parties réelle et imaginaire du polynôme $F(j\omega)$; pour que les parties réelles des racines de $F(p)$ soient négatives, il faut et il suffit que :

1) les coefficients de $F(p)$ soient tous de même signe,

2) les racines des polynômes $A(\omega)$ et $B(\omega)$ soient réelles, distinctes et *entrelacées*.

Ce théorème résulte immédiatement d'un théorème de Bihler et Hermite (7) par permutation des rôles des axes réel et imaginaire du plan complexe.

Extension à certaines classes de fonctions entières. Son intérêt pratique.

Des retards dans la détection de la grandeur réglée Θ sont souvent inévitables, dans certaines installations chimiques ou électrochimiques par exemple. De tels retards se traduisent par l'apparition d'un facteur exponentiel de la forme $e^{p\tau}$ dans l'expression de l'impédance symbolique $f(p)/g_0$ (14). Lorsque l'on doit d'autre part tenir compte, dans des installations du type thermique, de la transmission progressive de la chaleur à travers des parois solides, l'impédance symbolique de l'installation est, non plus un polynôme, mais une fonction entière (9) d'ordre généralement inférieur à l'unité (15). Ce sont presque toujours de tels phénomènes, lorsqu'ils sont importants, qui limitent le domaine de stabilité du circuit de régulation.

Or, il résulte de théorèmes sur les fonctions entières limites de polynômes, établis par G. Polya et N. Obrechkoff, que le critère d'enlacement des racines précédemment énoncé reste applicable dans ces cas (8) (10).

L'intérêt de la méthode de discussion que nous proposons ici provient en grande partie du fait que seules les plus petites, parmi la double infinité des racines des fonctions entières $A(\omega)$ et $B(\omega)$, interviennent en pratique dans la discussion. Nous avons montré que cette propriété est générale dans le cas des installations thermiques, et

plus généralement dans tous les cas où les racines de l'équation $f(p) = o$ sont réelles.

Remarque sur le choix des grandeurs de référence. — Il est nécessaire, si l'on veut donner une signification intrinsèque aux coefficients rg_0, hg_0. kg_0 et, plus généralement, à la fonction $g_0 R(p)$, de n'introduire dans les calculs que des variations relatives, indépendantes des unités. On doit donc choisir dans chaque cas une grandeur fixe de comparaison. Or, il peut y avoir une ambiguïté dans ce choix, surtout lorsqu'il s'agit d'une température. Montrons que cette indétermination ne se répercute pas sur le calcul de $g_0 R(p)$, et peut donc être levée par des considérations de pure commodité.

a) Soient en effet $q(p)$ et $\theta(p)$ les variations homologues de la grandeur de réglage et de la grandeur réglée, et soient, d'autre part, Q et Θ un premier choix de valeurs de référence.

L'impédance symbolique de l'installation est alors définie par :

$$\frac{\theta(p)}{\Theta} = \frac{g_0}{f(p)} \frac{q(p)}{Q}.$$

A la variation stationnaire ΔQ, correspond en particulier la variation ΔΘ limite ($t = \infty$), déterminant le nouveau régime permanent :

$$\frac{\Delta\Theta}{\Theta} = g_0 \frac{\Delta Q}{Q}.$$

Adoptons comme deuxième choix de valeurs de référence ΔΘ et ΔQ. On obtient :

$$\frac{\theta(p)}{\Delta\Theta} = \frac{1}{f(p)} \frac{q(p)}{\Delta Q}.$$

La nouvelle impédance de transfert ne diffère de la première que par le facteur constant g_0.

b) Comparons les expressions $R_1(p)$ et $R_2(p)$ de la fonction régulatrice, qui traduisent, avec le premier et le deuxième choix de valeurs de référence, le fonctionnement du régulateur :

Soit $q'(p)$ la variation que provoque le régulateur en réponse au déréglage $\theta(p)$. $q'(p)$ et $\theta(p)$ sont liés :

avec le premier choix, par :

$$\frac{q'(p)}{Q} = -R_1(p) \frac{\theta(p)}{\Theta};$$

avec le deuxième choix, par :

$$\frac{q'(p)}{\Delta Q} = -R_2(p) \frac{\theta(p)}{\Delta\Theta}.$$

Il en résulte que :

$$R_2(p) = R_1(p) g_0.$$

c) Les premiers membres de l'équation du circuit de régulation, respectivement $f(p) + g_0 R_1(p)$ dans le premier cas, et $f(p) + R_2(p)$ dans le deuxième, *sont donc identiques.*

$g_0 R(p)$ est indépendant de l'ambiguïté signalée et caractérise intrinsèquement le réglage.

On remarque la disparition commode de g_0, quand on prend ΔQ et $\Delta\Theta$ comme grandeurs de référence. Nous adopterons fréquemment ce choix dans les exemples.

CHAPITRE II

APPLICATION A LA DÉTERMINATION DES LIMITES DE STABILITÉ DES PRINCIPALES CLASSES DE RÉGLAGES CONTINUS

Réglage par action proportionnelle.

Limite du coefficient de régulation imposée par la stabilité. — Nous utiliserons les notations :

$$f(j\omega) = A(\omega^2) + j\omega B(\omega^2)$$
$$f(j\omega) + rg_0 = A_r(\omega^2) + j\omega B_r(\omega^2)$$

En posant $x = \omega^2$, il vient :

$$A_r(x) = A(x) + rg_0. \qquad \text{(II,1)}$$

$$B_r(x) = B(x). \qquad \text{(II,2)}$$

L'installation, démunie de son régulateur, étant supposée stable :

1° Les racines de $A(x)$ et $B(x)$ sont réelles, positives et enlacées.

2° De ces deux groupes enlacés de racines, la plus petite est racine de $A(x)$.

Donc, si $a_1, a_2, \ldots, a_{2q}, a_{2q+1}, \ldots, b_1, b_2, \ldots, b_{2q}, b_{2q+1}, \ldots$ désignent respectivement les racines de $A(x)$ et $B(x)$ supposées numérotées dans le sens des x croissants, leur disposition sur l'axe des x est conforme à celle de la figure 2.

3° Les coefficients de $f(p)$ sont tous de même signe et peuvent être supposés positifs sans restreindre la généralité du raisonnement. Les termes constants de A et B sont alors positifs et, par suite, la pente des courbes $A(x)$ et $B(x)$ en leurs points de rencontre avec l'axe des x est de signe —, lorsque la racine correspondante est d'indice impair et de signe + dans le cas contraire (fig. 2).

D'après l'identité (II,1), la courbe $y = A_r(x)$ s'obtient à partir de la courbe $y = A(x)$ par une translation de module r, de direction et de

sens Oy. Lorsque l'on augmente le taux de réaction r, l'accroissement progressif de module entraîne fatalement, pour une valeur « critique » r_0 de r, la fusion d'une racine de $A(x)$ avec une racine de $B(x)$, que nous désignerons par $x_0 = \omega_0^2 \cdot [f(j\omega_0) + r_0 g_0]$ est alors nul et,

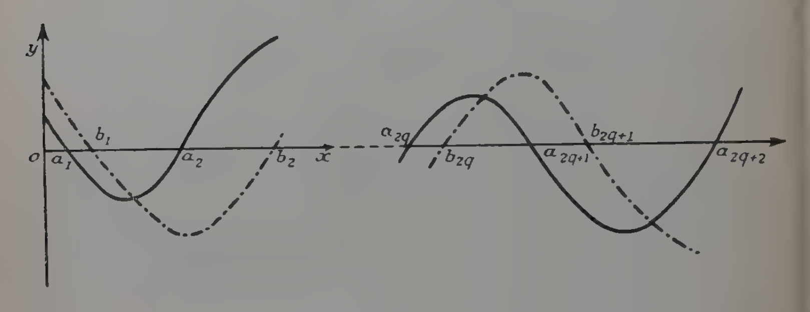


Fig. 2.

corrélativement, apparaissent des oscillations spontanées, de pulsation ω_0. Le réglage cesse d'être stable.

Compte tenu du sens de la translation effectuée, il apparaît sur la figure (2) que x_0 ne peut être qu'une racine d'indice impair, soit b_{2q+1}, de $B(x)$. Par contre, l'intersection des deux courbes $y = A_{r_0}(x)$ et $y = B(x)$ en b_{2q+1} peut présenter l'un ou l'autre des deux aspects (I) et (II) de la figure 3.

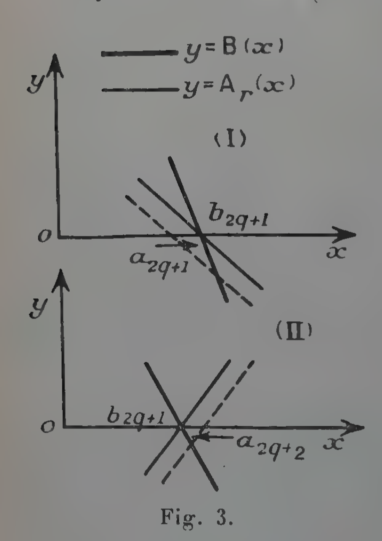


Fig. 3.

Dans le premier cas, la disposition initiale des deux courbes $A(x)$ et $B(x)$ est celle de la figure 4 cas I et c'est a_{2q+1} qui fusionne avec b_{2q+1}. Dans le deuxième cas, la disposition initiale est celle de la figure 4 cas II et c'est a_{2q+2} qui fusionne avec b_{2q+1}.

En pratique, il suffit, pour déterminer le taux critique r_0, de considérer les courbes $A(x)$ et $B(x)$. On remarque, en effet, que $r_0 g_0$ est mesuré par le plus court des vecteurs $\overrightarrow{H_1 b_1}$, $\overrightarrow{H_2 b_2}$, ..., $\overrightarrow{H_{2q+1} b_{2q+1}}$, ...

Déterminer r_0 *revient donc à calculer le plus petit en module de* *nombres* $A(b_1)$, $A(b_2)$, ..., $A(b_{2q+1})$, ... Il est intéressant de noter ic

que, dans la majorité des cas, ce calcul est simple. Nous verrons, en effet, qu'il porte le plus souvent sur la première racine b_1.

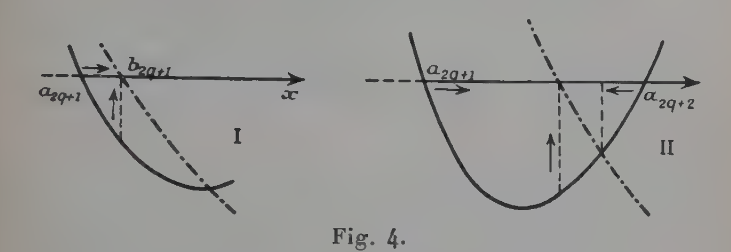


Fig. 4.

Avantage résultant de l'introduction d'un réglage par action dérivée.

Le sens favorable de la correction dérivée dépend de l'installation : il ne correspond pas nécessairement à une réaction négative. — L'introduction d'une action dérivée dans le circuit du régulateur se traduit par l'adjonction d'un terme en hp dans $R(p)$. Le premier membre de l'équation $f(p) + rg_0 = 0$ doit être alors remplacé par $f(p) + rg_0 + hg_0 p$. Développant $f(j\omega) + rg_0 + hg_0 j\omega$ sous la forme $A_{rh}(\omega^2) + j\omega B_{rh}(\omega^2)$, il vient ici :

$$A_{rh}(x) = A(x) + rg_0.$$
$$B_{rh}(x) = B(x) + hg_0.$$

La courbe $y = A_r(x)$ reste inchangée, mais la courbe $y = B_{rh}(x)$ se déduit à son tour de la courbe $y = B(x)$ par une translation parallèle à Oy, de module h et de sens Oy si $h > 0$, de sens contraire si $h < 0$.

Introduisons ce réglage par action dérivée alors que la fusion des racines en b_{2q+1} a déjà été exactement réalisée (fig. 3) par l'application de la correction proportionnelle de taux critique r_0. Pour analyser l'effet de ce nouveau réglage sur la stabilité, nous devons distinguer les deux cas de la figure 3.

Si la fusion des racines s'est opérée suivant le processus I, il est clair que la translation de la courbe $y = B(x)$ vers les y positifs rétablira les racines dans leur ordre primitif. Nous retrouvons l'effet stabilisateur de l'action dérivée caractérisée par un module $h > 0$. Cet effet est connu et l'action régulatrice de ce type est largement utilisée en pratique.

Par contre, si la fusion des racines s'est opérée suivant le processus II, *il convient d'adopter une valeur négative de* h pour restaurer l'ordre initial des racines et rétablir par conséquent la

stabilité du réglage. L'action dérivée du régulateur communément utilisé ($h > 0$) serait, au contraire, défavorable dans ce cas.

L'éventualité *a*) est la plus probable. Elle se présente en particulier lorsque l'instabilité est essentiellement due à des phénomènes de propagation ou de transmission de chaleur : nous le montrerons plus loin. Cependant, le cas *b*) peut aussi se présenter, quand il s'agit de *systèmes* mécaniques, électriques ou électromécaniques *peu amortis.*

Recherche d'une correction dérivée optima. — Si nous renforçons progressivement l'action dérivée, après avoir convenablement choisi son signe, une racine de $B_{r_0 h}(x)$ fusionnera fatalement à son tour pour une valeur h_0 de h avec une racine $x'_0 = \omega_0'^2$ d'indice pair si h est > 0 [1], impair si h est < 0, et, corrélativement, s'amorceront des oscillations de pulsation ω'_0. Nous supposerons qu'une réduction de r en-deçà de r_0 restaure la stabilité, car le cas contraire, théoriquement possible, nous ramènerait aux conditions initiales de la discussion. A chaque valeur de h de l'intervalle $0, h_0$, correspond une valeur r' de r qui déclenche le régime oscillatoire. Cet ensemble de valeurs r' définit une fonction de h, continue et bornée dans l'intervalle $0, h_0$. La fonction considérée prenant la même valeur r_0 aux extrémités de l'intervalle, présente, dans cet intervalle, un maximum absolu r_1, auquel correspond une valeur déterminée h_1 de h intérieure à l'intervalle $0, h_0$. Cette valeur h_1 de h peut être considérée comme optima, puisqu'elle permet d'atteindre un coefficient de réglage proportionnel maximum.

Il est possible d'atteindre expérimentalement h_1 par approximations successives. Remarquons d'abord que si l'on a réalisé la combinaison caractérisée par les taux r_1, h_1, nous sommes assurés que les couples de racines de $A_{r_1 h_1}(x)$ et $B_{r_1 h_1}(x)$ correspondant par continuité à ω_0^2 et $\omega_0'^2$ sont simultanément confondus. Dès lors, r_0 et h_0 ayant été préalablement déterminés, on adoptera le module $\frac{h_0}{2}$, et l'on observera la pulsation des oscillations qui apparaissent lorsque l'on atteint le taux critique correspondant du réglage par action proportionnelle. Suivant que cette pulsation est de l'ordre de ω_0 ou de ω'_0, on essaiera $\frac{3h_0}{4}$ ou $\frac{h_0}{4}$ et ainsi de suite.

En pratique, la bande de fréquences qui intéresse une installation étant toujours assez réduite, ω_0^2 et $\omega_0'^2$ sont presque toujours deux

[1] En effet, dans la translation vers les $y > 0$ de la courbe $y = B(x)$, toutes les racines d'indice impair de $B(x)$ se déplacent vers les $x > 0$ et les racines d'indice pair vers les $x < 0$. Ce double déplacement fait converger les racines de $B(x)$ vers les racines d'indice pair de $A(x)$ (fig. 2). Les conclusions sont inversées si $h < 0$.

racines consécutives de $A(x)$ (fig. 5). Les deux groupes de pulsations tendent alors vers une limite commune ω_1. La courbe $y = A_{r_1}(x)$ est, dans ce cas, tangente à l'axe des x au point d'abscisse $x = \omega_1^2$. Il en résulte enfin que $r_1 = |A(x_1)|$.

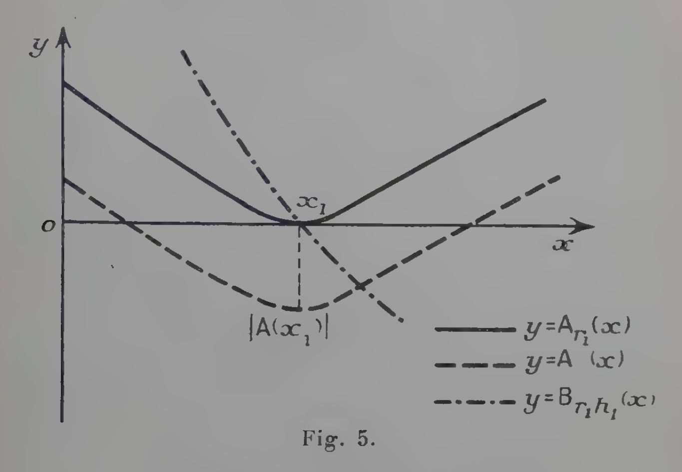


Fig. 5.

Réglage par action intégrale.

L'action intégrale est caractérisée par un terme en $\frac{k}{p}$, $(k > 0)$ dans l'expression de $R(p)$. Nous distinguerons dans l'étude de l'influence de ce terme sur la stabilité deux cas, qui correspondent d'ailleurs à deux modes d'emploi de cette classe de réglage dans la pratique industrielle.

1er cas. Le rôle de l'action intégrale régulatrice est prépondérant. — C'est le cas des réglages de pH, et, d'une façon générale, de nombreux réglages dans lesquels existe un temps mort de *propagation* entre l'époque à laquelle se manifeste le déréglage et l'époque à laquelle entre en jeu l'effet régulateur. Si l'on adjoint à l'action intégrale d'autres actions correctrices, proportionnelles ou dérivées, celles-ci doivent avoir pour fonction essentielle de procurer une stabilité améliorée et de permettre éventuellement de renforcer le taux k de l'action régulatrice intégrale, c'est-à-dire de réduire son temps d'action.

Supposons d'abord l'action régulatrice intégrale employée seule. — L'équation (I,5) s'écrit alors :

$$[pf(p) + kg_0]\varepsilon(p) = pf(p)\varepsilon_0(p). \qquad \text{(II,3)}$$

Au premier membre de (II,3) correspondent, par substitution de $j\omega$ à p les parties réelle et imaginaire suivantes :

$$-\omega^2 B(\omega^2) + kg_0 \qquad \text{(partie réelle)}$$
$$\omega A(\omega^2) \qquad \text{(partie imaginaire)}$$

Il est clair que l'on peut choisir k positif (non nul), assez petit pour que les racines en ω^2 de $-\omega^2 B(\omega^2) + kg_0$ et $A(\omega^2)$ soient réelles, positives et enlacées.

D'autre part, k étant positif, les racines en $\omega^2 = x$ de $-\omega^2 B(\omega^2) + kg_0$ sont égales aux abscisses ob'_0, ob'_1, ..., des points d'intersection de la courbe $y = B(x)$ avec la branche d'hyperbole $xy = kg_0$, $x > 0$. L'enlacement des deux groupes $a_1, a_2, \ldots, b'_0, b'_1, \ldots$, peut donc être pris comme critère de stabilité du réglage : c'est sous cette forme commode que nous l'utiliserons dans la discussion qui suit.

Au cours de cette discussion, nous profiterons de la propriété suivante présentée par les fonctions $A(x)$ et $B(x)$:

La fonction $A(x)$, ou $B(x)$, ne présente ni maximum ni minimum dans le domaine des valeurs de x inférieures ou égales à la plus petite

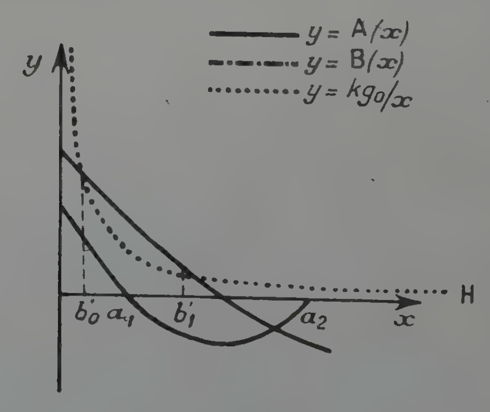


Fig. 6.

de ses racines. La concavité de la courbe représentative est, de plus, constamment tournée vers les $y > 0$ dans le même domaine.

En effet, en vertu d'une propriété connue des polynomes dont les racines sont réelles et distinctes, propriété qui s'étend à la classe des fonctions entières qui nous intéressent, les racines de $A'(x)$ sont toutes réelles et distinctes et sont entrelacées avec les racines de $A(x)$, la plus petite racine de $A'(x)$ étant supérieure à la plus petite racine de $A(x)$. On en déduit que les racines de $A''(x)$ sont, elles aussi, réelles et distinctes, la plus petite de ces racines étant supérieure à la

plus petite racine de $A'(x)$ et, *a fortiori*, à celle de $A(x)$ (ces résultats sont évidemment valables pour $B(x)$, $B'(x)$, $B''(x)$).

Développant $f(p)$ en série entière :

$$f(p) = 1 + a_1 p + a_2 p^2 + \ldots + a_n p^n + \ldots \qquad a_1, a_2, \ldots, a_n > 0$$

il vient :

$$\left.\begin{aligned} A(x) &= 1 - a_2 x + a_4 x^2 - \ldots + (-1)^n a_{2n} x^n + \ldots \\ B(x) &= a_1 - a_3 x + a_5 x^2 - \ldots + (-1)^n a_{2n+1} x^n + \ldots \end{aligned}\right\} \qquad \text{(II,4)}$$

Il suffit de remarquer que $A'(0)$, $B'(0)$ sont négatifs et $A''(0)$, $B''(0)$ positifs pour établir la propriété énoncée.

Nous pouvons maintenant préciser l'aspect général des courbes $y = A(x)$ et $y = B(x)$ dans le domaine des basses fréquences (fig. 6). Sur la même figure, a été tracée la branche d'hyperbole (H) : $xy = kg_0$, $x > 0$.

Il apparaît qu'un renforcement exagéré de k déclenchera fatalement un régime oscillatoire, le plus souvent de basse fréquence, par fusion de b'_0 ou b'_1 avec a_1. Le cas exceptionnel correspondrait à celui d'une installation très peu amortie sur une fréquence plus élevée.

Développons la discussion dans le cas le plus intéressant en pratique où seules les racines les plus basses sont à prendre en considération.

Influence d'actions correctrices annexes. — Supposons que l'on augmente l'action intégrale jusqu'à la limite d'accrochage. Dans le cadre des hypothèses retenues, celle-ci peut être atteinte par fusion avec a_1 de l'un ou l'autre des points b'_0 (fig. 7, a) ou b'_1 (fig. 7, b).

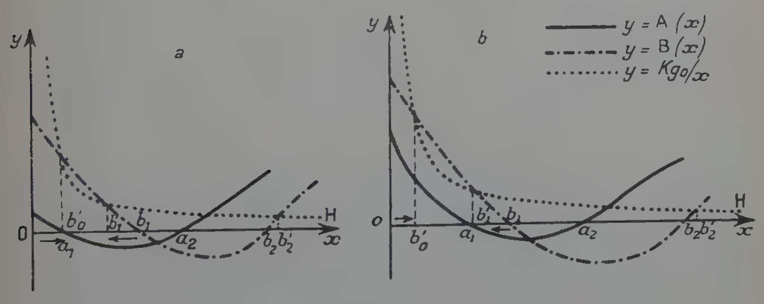


Fig. 7.

Dans l'un et l'autre cas, on reconnaît sur la figure que la stabilité est favorisée par l'introduction dans le circuit du régulateur d'une action correctrice dérivée de sens normal ($h > 0$), qui entraîne une translation de la courbe $y = B(x)$ vers les $y > 0$.

Par contre, l'adjonction d'une action proportionnelle, qui entraîne la translation de la courbe $y = \mathrm{A}(x)$ vers les $y > 0$, serait favorable dans le premier cas (a), défavorable dans le second (b).

Correction dérivée. — Laissant de côté pour l'instant l'intervention d'une correction proportionnelle dont l'effet est *a priori* incertain, augmentons progressivement le taux h de l'action dérivée. La stabilité est restaurée pour la pulsation $\omega' = \sqrt{oa_1}$, mais, si l'on augmente exagérément h, de nouvelles oscillations prendront naissance avec la pulsation plus élevée $\omega'' = \sqrt{oa_2}$ (fig. 8).

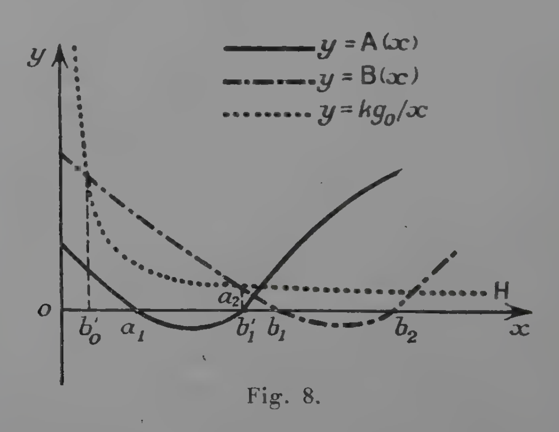


Fig. 8.

La figure 8 fait apparaître ce résultat intéressant qu'un renforcement de l'action intégrale est alors possible et restaure la stabilité pour la fréquence $\frac{\omega''}{2\pi}$. Par augmentation continue du taux k de l'action intégrale, on verra finalement réapparaître les oscillations de pulsation $\omega' = \sqrt{oa_1}$ par l'un des deux modes de fusion de la figure 7.

Nous sommes ainsi conduits à réitérer l'opération qui consiste à augmenter successivement l'action dérivée et l'action régulatrice intégrale. Cette succession d'alternances favorables ne peut être indéfiniment poursuivie, elle conduit de proche en proche au stade représenté par la figure 9, où les oscillations se produisent simultanément sur les pulsations $\omega' = \sqrt{oa_1}$ et $\omega'' = \sqrt{oa_2}$.

Intervention combinée des corrections proportionnelle et dérivée. — Soit k' le taux maximum finalement obtenu (fig. 9), et soit h' la valeur correspondante de h. Appliquons maintenant une action proportionnelle de taux r. Les racines a_1 et a_2 sont alors remplacées par deux racines a'_1 et a'_2 plus rapprochées, auxquelles correspond un

nouveau stade-limite analogue à celui de la figure 9 et, par conséquent, un nouveau couple $h'(r)$, $k'(r)$.

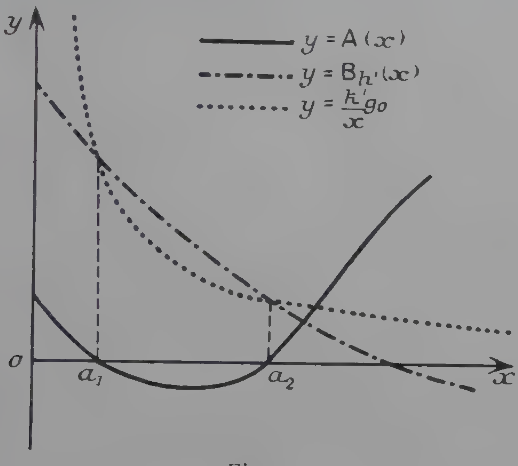


Fig. 9.

Il est clair que l'on ne peut dépasser le taux r_1 d'action proportionnelle pour lequel la courbe $A_{r_1}(x)$ est tangente à l'axe des x (fig. 10) $a'_1 a'_2 b'_0 b'_1$ étant alors confondus. La courbe $y = B(x)$ est, d'autre part, tangente à l'hyperbole $y = \frac{k'_1 g_0}{x}$.

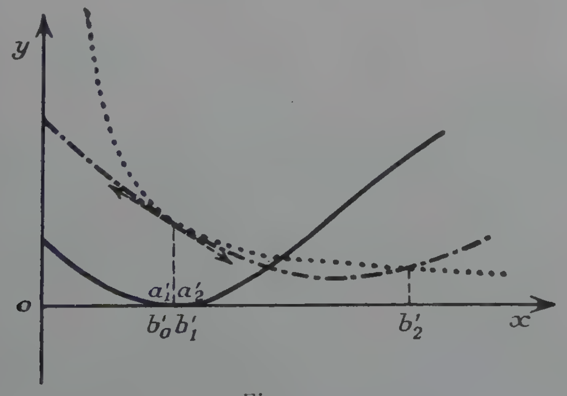


Fig. 10.

Parmi toutes les valeurs ainsi explorées de $k'(r)$ dans le domaine o, r_1 des valeurs de r, l'une d'elles $k'_0(r_0)$ est la plus grande. J'ai démontré

qu'il résulte de l'entrelacement des deux groupes de racines b'_2, b'_3, ... et a_3, a_4, ..., que ce maximum k'_0 de k' correspond au cas-limite de la figure 10. Par comparaison avec la figure 9, on voit que l'introduction d'une action correctrice proportionnelle est finalement toujours favorable, même lorsque initialement l'on se trouvait dans les les conditions du cas (b) de la figure 7, où cette action était alors défavorable. On explique ainsi les succès que procure généralement l'association des trois réglages.

Il est, d'autre part, possible, en modifiant très peu la discussion qui précède, d'en déduire un procédé commode pour atteindre la combinaison optima par une suite d'opérations systématiques qui évite les tâtonnements habituels. Cette modification tient compte du fait que le taux de l'action régulatrice intégrale ne doit pas être poussé jusqu'au voisinage du taux d'amorçage des oscillations entretenues, mais doit être limité au niveau pour lequel la durée de l'amortissement des oscillations devient comparable à la constante de temps $1/kg_0$ (¹). Il est légitime de dire que ce niveau correspond à l'amortissement critique, puisque c'est à ce niveau que l'on observe le temps minimum du retour à l'équilibre de la grandeur réglée, lorsque l'on renforce progressivement l'action intégrale.

On opérera donc ainsi :

1° On commencera par augmenter progressivement le taux k du réglage par action intégrale, jusqu'à ce que l'on observe l'amortissement critique des oscillations de pulsation voisine de $\sqrt{oa_1}$.

2° Laissant ensuite k fixe, on introduira une action correctrice dérivée de taux h positif, croissant. La stabilité s'améliorera sur la fréquence $\frac{\sqrt{oa_1}}{2\pi}$, mais on atteindra fatalement l'amortissement critique des oscillations de pulsation plus élevée voisine de $\sqrt{oa_2}$.

3° Laissant alors h fixe, on augmentera de nouveau k et l'on recommencera la succession des opérations 1° et 2° jusqu'à ce que les gains réalisés ainsi pour k deviennent peu importants. L'amortissement critique sera donc sensiblement atteint pour les deux pulsations observées.

4° Ne modifiant plus ni h, ni k, on introduit alors l'action correctrice proportionnelle. Celle-ci a pour effet, d'après la figure 9 d'amé-

(¹) Depuis la soutenance de cette thèse, nous avons pu appliquer la méthode à la recherche de la combinaison des trois classes de réglage qui fournit l'amortissement maximum d'une perturbation du type échelon-unité. Ce problème est en particulier complètement résolu dans le cas où les racines de $f(p)$ sont réelles.

liorer la stabilité des oscillations de la plus basse fréquence, mais, par contre, de diminuer l'amortissement des oscillations de la plus haute fréquence.

5° Les opérations 1) et 2) peuvent alors être renouvelées avec succès ; elles seront effectuées pour des taux r de plus en plus grands jusqu'au moment où les deux pulsations seront pratiquement indiscernables. On sait que le taux de réglage par action intégrale atteint alors est le plus élevé possible.

2e cas. Le rôle de l'action régulatrice proportionnelle est prépondérant ; celui de l'action intégrale complémentaire. — C'est le cas, en général, des réglages de température des fours à marche continue et des réglages de pression. Le rôle de l'action régulatrice proportionnelle est prépondérant en régime de fonctionnement courant, l'action intégrale réalisant l'effet complémentaire qui supprime le statisme. Mais, lorsque survient une forte variation de la charge du four ou du débit du fluide dont on règle la pression par chauffage, le point de fonctionnement de l'installation doit être déplacé de façon importante, et la nouvelle valeur correcte du paramètre de réglage peut être très éloignée de la précédente. Seule, l'intervention de l'action correctrice intégrale permet alors d'ajuster exactement la grandeur de réglage. L'action proportionnelle reprend ensuite son rôle prépondérant, mais l'éventualité de tels changements de régime rend indispensable la présence d'un réglage intégral.

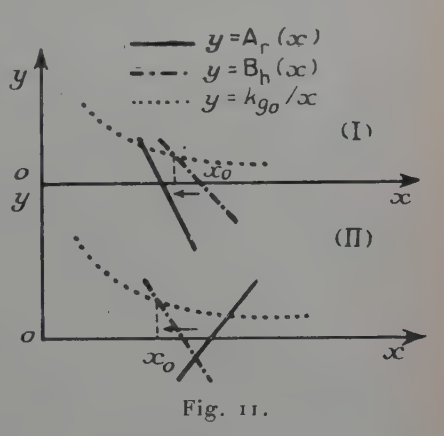


Fig. 11.

Etudions dans ce deuxième cas la stabilité du réglage.

Supposons d'abord h *nul et* r *légèrement inférieur à* r_0 limite d'amorçage des oscillations entretenues, dans le cas où la régulation proportionnelle agit seule.

Les fonctions $A_r(x)$ et $B(x)$ ont, au voisinage de leurs racines presque confondues (d'abscisse $x_0 = \omega_0^2$), l'un ou l'autre des deux aspects de la figure 11.

Or, la racine correspondante de $B(x) - \frac{kg_0}{x}$ se trouve déplacée par rapport à celle de $B(x)$ dans le sens de la flèche, car $B'(x_0)$ est négatif.

Il en résulte que l'introduction d'une action intégrale n'est favorable que dans le cas où la correction dérivée de taux négatif est, elle aussi, favorable (cas 2). Dans le cas 1, au contraire, son effet sur la stabilité est défavorable, mais on remarque alors que l'on pourra restaurer la stabilité en introduisant une action correctrice dérivée de sens normal $h > 0$.

Supposons maintenant h *fixé à sa valeur optima* h_1. — Prenons d'abord r légèrement inférieur à sa limite critique r_1. L'aspect des courbes $A_r(x)$ et $B_{h_1}(x)$ au voisinage des deux racines intéressées $x_0 = \omega_0^2$ et $x'_0 = \omega'_0$ est l'un de ceux de la figure 12.

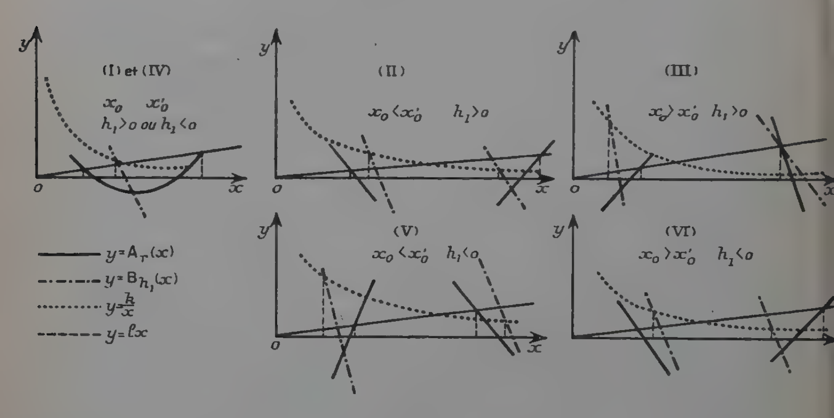


Fig. 12.

Dans tous les cas, l'intervention du réglage intégral diminue la marge de sécurité soit au voisinage de x_0 (cas I, II, III : $h_1 > 0$), soit au voisinage de x'_0 (cas IV, V, VI : $h_1 < 0$). Dans les cas de la première catégorie ($h_1 > 0$), il convient de diminuer l'action régulatrice proportionnelle pour faire place à l'action correctrice intégrale que l'on désire introduire. Dans les cas de la deuxième catégorie ($h_1 < 0$), il est, au contraire, possible de maintenir le niveau de l'action proportionnelle, mais il faut diminuer le module de l'action dérivée.

Amélioration de la stabilité par une correction dérivée seconde. — Il est intéressant de rechercher sur cette figure quel serait l'effet sur la stabilité d'une action correctrice dérivée du second ordre. Celle-ci se traduirait par l'introduction dans $B(p)$ d'un terme en lp^2. Nous en tiendrons compte en remplaçant les abscisses de $A_r(x)$ par les abscisses des points d'intersection de la courbe $y = A_r(x)$ avec la droite $y = g_0 lx$. On voit facilement sur la figure 12 l'heureux

effet d'une telle substitution quand l est positif. L'introduction de cette classe de réglage apparaît donc souhaitable dans la majorité des cas ; elle est d'ailleurs spontanément réalisée dans les régulateurs mécaniques du fait de l'inertie des pièces. Notons toutefois qu'une inclinaison exagérée de la droite $y = g_0 l x$ pourrait introduire des oscillations parasites dans un domaine de fréquences relativement élevées. L'inertie des pièces peut donc être néfaste, soit lorsqu'elle est importante, soit lorsque le régulateur est associé à une installation dont le coefficient d'amplification g_0 est élevé.

Cas particulier : le terme constant de l'impédance de transfert de l'installation est nul.

Dans ce cas, la fonction $f(p)$ peut s'écrire : $f(p) = \frac{1}{g_0} p . F(p)$, où $F(p)$ est une fonction du type précédemment étudié.

Des premiers membres de cette forme se rencontrent par exemple lorsque l'on règle un niveau en agissant sur un débit, la position d'un rotor en agissant sur sa vitesse, et, de façon générale, lorsqu'à une valeur fixe du paramètre de réglage, correspond une valeur d'équilibre de la dérivée par rapport au temps de la grandeur à régler.

L'équation (I,5) devient alors :

$$[pF(p) + g_0 R(p)]\varepsilon(p) = pF(p)\varepsilon_0(p). \qquad \text{(II,5)}$$

On remarque que l'introduction d'un réglage par action proportionnelle de taux suffisamment faible r fait apparaître au premier membre une fonction $pF(p) + rg_0$, à partir de laquelle la discussion relative à la stabilité peut être développée comme précédemment, par la méthode de fusion des racines.

La limite de $\varepsilon(t)_{t\to\infty}$ est, on le sait, égale à la limite de l'expression $p \frac{pF(p)}{pF(p) + g_0 R(p)} \varepsilon_0(p)$ quand p tend vers o. Dans le cas d'un réglage par action proportionnelle, cette limite vérifie donc :

$$\lim . \varepsilon(t)_{t\to\infty} = \lim . \frac{p^2\varepsilon_0(p) + \dots}{p + \dots rg_0}{}_{p\to\infty}.$$

Dans l'hypothèse d'une perturbation en marche d'escalier, $\varepsilon_0(p) = \frac{\varepsilon_0}{p}$ on voit que $\varepsilon(t)_{t\to\infty} \to$ o. Le réglage par action proportionnelle joue alors un rôle comparable à celui des réglages par action intégrale étudiés dans les paragraphes précédents.

Mais, le plus souvent, dans le cas actuel, la perturbation-type la plus intéressante à considérer est une perturbation dont l'amplitude croît proportionnellement au temps t : une fuite de débit constant

provoque, par exemple, une telle perturbation du niveau d'eau d une chaudière. Nous la traduirons par : $\varepsilon_0(t) = 0$, pour $t < 0$ et $\varepsilon_0 t$ pour $t \geqslant 0$. Dans ces conditions, $\varepsilon_0(p) = \frac{\varepsilon_0}{p^2}$ et, par suite, $\varepsilon(t)$ a pour limite $\frac{\varepsilon_0}{rg_0}$ pour $t = \infty$.

On retrouve ainsi l'effet habituel du réglage par action proportionnelle, et l'on montrerait sans peine que le réglage par action intégrale supprime, dans ce cas, le déréglage résiduel $\frac{\varepsilon_0}{rg_0}$.

Application aux servo-mécanismes.

Considérons l'amplificateur A (fig. 13) qui fait correspondre à la grandeur d'entrée $e(p)$ la grandeur de sortie $\sigma(p)$, par la relation :

$$f(p).\sigma(p) = g_0.e(p)$$

dans laquelle $f(p)$ désigne une fonction du type précédent.

Lorsque e se réduit à une constante e_0, $t \geqslant 0$ ($e = 0$ pour $t < 0$), σ se fixe, après une période transitoire dont la durée dépend de $f(p)$, à la valeur : $\sigma_0 = g_0.e_0.g_0$ est le coefficient d'amplification de A : c'est un nombre généralement sensible aux fluctuations de la source d'énergie qui alimente A.

e et σ sont les mesures de deux grandeurs de mêmes dimensions ou les variations relatives de deux grandeurs quelconques.

La figure 13 représente schématiquement le servo-mécanisme constitué par l'amplificateur A muni d'un circuit de réaction négative

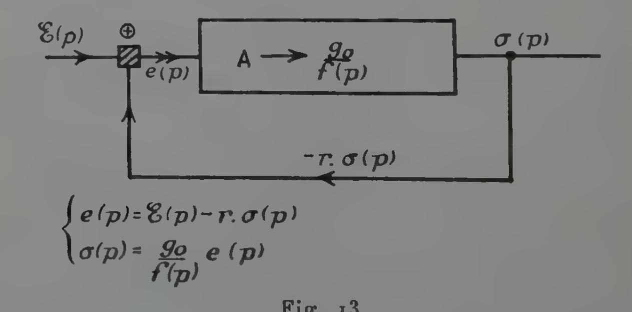


Fig. 13.

de taux r. La relation entre la grandeur de sortie $\sigma(p)$ et la grandeur d'entrée $\mathcal{E}(p)$ est maintenant :

$$[f(p) + rg_0]\sigma(p) = g_0\mathcal{E}(p). \quad \text{(II,6)}$$

La forme du premier membre de (II,6) montre que les conditions de stabilité sont comparables à celles du réglage par action proportionnelle. Cette analogie se trouve renforcée par le fait que, dans le cas actuel, il y a encore intérêt à augmenter rg_0 dans les limites compatibles avec la stabilité du système.

En effet, le coefficient d'amplification du servo-mécanisme considéré vaut :

$$\mathcal{R} = \frac{g_0}{1 + rg_0}.$$

A la fluctuation $\frac{\Delta g_0}{g_0}$ de g_0 correspond la variation :

$$\frac{\Delta \mathcal{R}}{\mathcal{R}} = \frac{\Delta g_0}{g_0} \cdot \frac{1}{1 + rg_0}. \qquad \text{(II,7)}$$

La fidélité du servo-mécanisme croît donc comme $1 + rg_0$, ce qui montre l'intérêt des grandes valeurs de rg_0.

Il résulte de ce qui précède que la discussion relative au réglage par action proportionnelle d'une installation caractérisée par la fonction $f(p)$ s'applique sans modification à l'étude de la stabilité du servo-mécanisme considéré. On peut donc conclure que :

1) Il existe une limite critique $r_0 g_0$ à partir de laquelle le servo-mécanisme est instable.

2) On améliore la stabilité en associant à la réaction proportionnelle une réaction du type dérivé, de taux $h > 0$ ou $h < 0$ selon le cas.

3) Il existe une réaction dérivée de taux h_1 qui permet d'atteindre la limite critique $r_0 g_0$ la plus élevée. La fidélité du servo-mécanisme peut alors être rendue maxima.

Dans le cas particulier où le terme constant de $f(p)$ est nul, ces résultats sont modifiés comme nous l'avons vu p. 601.

CHAPITRE III

APPLICATIONS ET EXEMPLES

Nous donnons, dans une première partie, deux applications concrètes simples de la méthode de fusion des racines : la fonction $f(p)$ se réduit ici à un polynôme. La deuxième partie est réservée à l'étude de quelques problèmes posés par l'existence de phénomènes de propagation, qui retardent l'intervention de la correction régulatrice et provoquent l'instabilité du réglage. L'étude de l'effet particulier de la transmission de la chaleur par conduction est laissée de côté : elle fait l'objet du chapitre suivant.

L'impédance de transfert $\frac{f(p)}{g_0}$ de l'installation est un polynôme.

Réglage de la force électro-motrice d'une dynamo génératrice par l'intermédiaire d'un amplidyne. — Le principe du montage est indiqué sur la figure 14. Les écarts entre la valeur de la force électro-

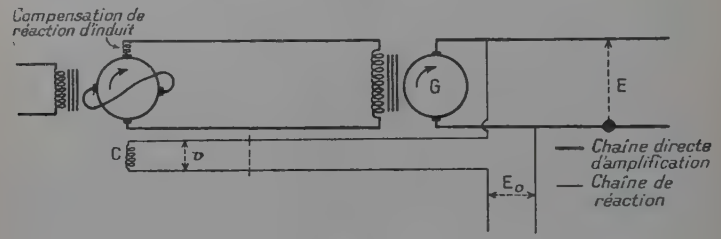


Fig. 14.

motrice développée par la dynamo génératrice G et la tension de réglage E_0 réagissent sur l'amplidyne par l'intermédiaire de l'enroulement de contrôle C, bobiné sur l'inducteur de l'amplidyne. Une action correctrice amplifiée est ainsi transmise au courant d'excitation de la dynamo G.

Impédance de transfert de l'installation. — Prenons comme paramètre de réglage la tension de contrôle v. Plus exactement, E_0 étant choisi comme tension de référence, c'est le rapport sans dimension $\eta = \frac{v}{E_0}$ qui jouera le rôle de paramètre de réglage. L'impédance de transfert de la chaîne amplificatrice A constituée par le système amplidyne-génératrice se calcule en remarquant que l'amplidyne est

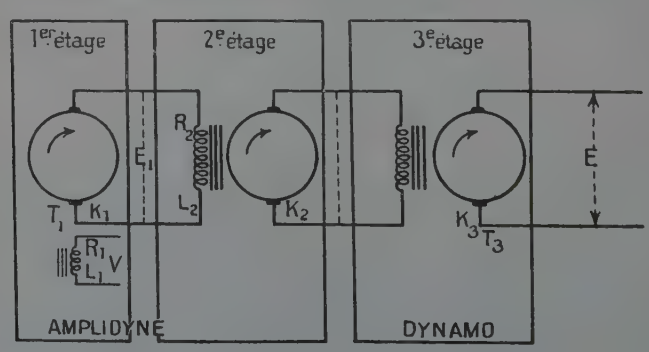


Fig. 15.

équivalent à l'ensemble de deux dynamos génératrices dont l'une excite l'autre (1). La chaîne A, schématiquement représentée sur la figure 15 comporte donc trois étages d'amplification, dont chacun peut être caractérisé par une constante de temps $T_i (i = 1, 2, 3)$ et un coefficient d'amplification K_i.

Lorsque la tension v est nulle, l'enroulement principal de l'inducteur (enroulement non figuré sur le schéma 15), excite seul l'amplidyne. La tension aux bornes de la dynamo G est alors de l'ordre de E_0.

Si l'on applique de plus une tension v aux bornes de l'enroulement C, il en résulte une variation ΔE de la force électromotrice de la dynamo, qui s'écrit, compte tenu de l'action en cascade des trois étages d'amplification :

$$\Delta E = \frac{K_1 K_2 K_3}{(T_1 p + 1)(T_2 p + 1)(T_3 p + 1)} v. \qquad \text{(III,1)}$$

Posant comme précédemment $\frac{\Delta E}{E_0} = \varepsilon$ et $K_1 K_2 K_3 = g_0$, l'équation (III,1) devient :

$$f(p)\varepsilon(p) = g_0 \eta(p)$$

avec :

$$f(p) = (T_1 p + 1)(T_2 p + 1)(T_3 p + 1).$$

Nature de la correction régulatrice. — Le montage de la figure 14 impose l'égalité :

$$v = -\Delta E \qquad \text{ou} \qquad \eta = -\varepsilon.$$

Il réalise donc *une action régulatrice proportionnelle de taux* $r = 1$ et l'on sait que le *coefficient de régulation* a, *dans ce cas, pour expression* $1 + g_0$. La valeur généralement très élevée de g_0 assure un réglage serré de la tension E, pourvu que la stabilité demeure satisfaisante.

Développons $f(p)$ sous la forme :

$$f(p) = 1 + \sigma_1 p + \sigma_2 p^2 + \sigma_3 p^3$$

avec :

$$\sigma_1 = \sum_{i=1}^{i=3} T_i, \qquad \sigma_2 = \sum_{i \neq j} T_i T_j, \qquad \sigma_3 = T_1 T_2 T_3.$$

Les courbes $A(x)$ et $B(x)$ se réduisent ici aux deux droites tracées sur la figure 16 :

$$A(x) = 1 - \sigma_2 x$$
$$B(x) = \sigma_1 - \sigma_3 x.$$

Un régime oscillant de fréquence $\sqrt{\frac{\overline{ob_1}}{2\pi}} = \sqrt{\frac{\sigma_1}{2\pi\sigma_3}}$ prend naissance, dès que le coefficient d'amplification atteint la valeur critique repré-

sentée par la longueur du segment $\overrightarrow{b_1 H_1}$. Le coefficient de régulation $1 + g_0$ doit, par conséquent, rester inférieur à $\frac{\sigma_1 \sigma_2}{\sigma_3}$.

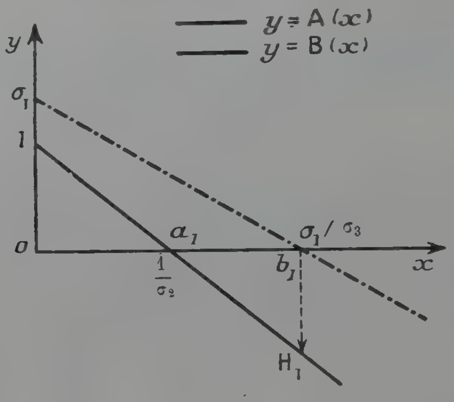


Fig. 16.

Amélioration de la stabilité par l'adjonction d'une correction dérivée. — La figure 16 montre que l'on améliore la stabilité et, par suite, les performances possibles du réglage proportionnel, en superposant une correction régulatrice dérivée de taux $h > 0$, qui entraîne une translation de la droite $y = \sigma_1 - \sigma_3 x$ vers les $y > 0$.

Cet avantage, prévu par la théorie, est bien confirmé en pratique. Un enroulement annexe C_1, alimenté par la tension de sortie de l'amplidyne, le plus souvent par l'intermédiaire d'un transformateur est, en effet, adjoint à l'enroulement de contrôle C (fig. 17), et ce dis-

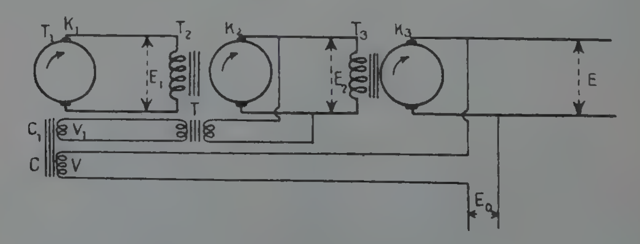


Fig. 17.

positif stabilisateur engendre, nous allons le montrer, une correction régulatrice à la fois proportionnelle et dérivée.

Soient v et v_1 la tension développée aux bornes respectives des enroulements C et C_1. T_1, K_1 désignant toujours les constantes du

premier étage de la chaîne d'amplification, et prenant cette fois $\eta = \frac{v + v_1}{E_0}$ comme paramètre de réglage, nous avons encore :

$$(T_1 p + 1)(T_2 p + 1)(T_3 p + 1)\varepsilon(p) = g_0 \eta(p)$$

et :

$$\frac{v}{E_0} = - \varepsilon.$$

Si, d'autre part, nous convenons de ne pas tenir compte des variations lentes de la tension E_2, pour lesquelles la correction dérivée est sans utilité, nous pouvons assimiler le transformateur T à un transformateur idéal caractérisé par un rapport de transformation S.

Il vient donc :

$$v_1 = - S\Delta E_2 = - S \frac{T_3 p + 1}{K_3} \Delta E_1.$$

Par suite :

$$\frac{v + v_1}{E_0} = - \left[S \frac{T_3 p + 1}{K_3} + 1 \right] \frac{\Delta E}{E_0}$$

η et ε sont donc liés par la relation :

$$\eta = - \left[\frac{ST_3}{K_3} p + \left(1 + \frac{S}{K_3} \right) \right] \varepsilon.$$

La fonction régulatrice $\frac{\eta(p)}{\varepsilon(p)}$ résulte bien de la superposition d'une action proportionnelle de taux $r = 1 + \frac{S}{K_3}$ et d'une action dérivée de taux positif $h = \frac{ST_3}{K_3}$.

Servo-mécanisme pneumatique. — Impédance de transfert d'un amplificateur pneumatique a plusieurs étages. — Un servo-mécanisme pneumatique comprend d'abord une chaîne amplificatrice directe de haut degré d'amplification comportant plusieurs étages en cascade (généralement deux). Le principe de chacun d'eux peut être représenté par le schéma-type de la figure 18.

Le déplacement θ_{n-1} d'un organe mécanique d'entrée du $n^{\text{ième}}$ étage contrôle le débit d'entrée ou de sortie, ou même l'un et l'autre de ces débits, de l'air comprimé qui alimente une capacité C_n déformable. La déformation produite est contrôlée par un ressort linéaire. Elle entraîne le déplacement θ_n de l'organe mécanique de sortie, qui commande à son tour l'entrée du $n + 1^{\text{er}}$ étage.

On montre sans peine que les variations $\Delta\varpi_n$ de la pression d'air à l'intérieur de C_n sont liées à $\Delta\theta_{n-1}$ par une relation de la forme :

$$[T_n p + 1]\Delta\varpi_n = k_n \Delta\theta_{n-1}.$$

On doit noter ici que T_n et k_n peuvent dépendre de θ_{n-1}. D'autre part, compte tenu de la dureté du ressort antagoniste, de son amor-

tissement, et de l'inertie des pièces déplacées, $\Delta\varpi_n$ et $\Delta\theta_n$ satisfont à une équation différentielle de la forme classique :

$$[\tau_n^2 p^2 + f_n p + 1]\Delta\theta_n = k'_n \Delta\varpi_n.$$

Le rapport de transmission s'écrit donc :

$$\frac{\Delta\theta_n}{\Delta\theta_{n-1}} = \frac{K_n}{(T_n p + 1)(\tau_n^2 p^2 + f_n p + 1)} \qquad \text{où } K_n = k_n k'_n.$$

Une chaîne comportant n étages lie le déplacement $\Delta\theta_n$ de l'organe

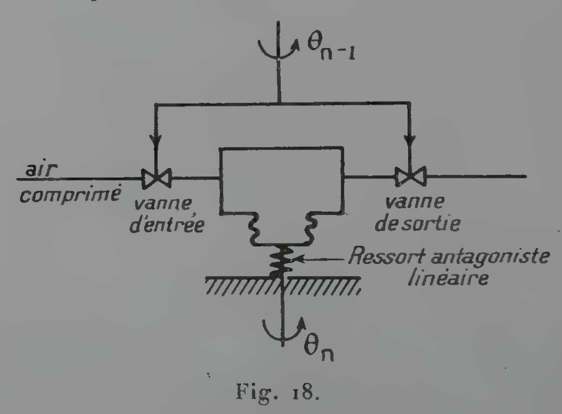


Fig. 18.

de sortie au déplacement $\Delta\theta_0$ de l'organe d'entrée par une relation de la forme :

$$f(p)\Delta\theta_0 = g_0 \Delta\theta_n$$

avec :

$$\begin{cases} f(p) = (T_1 p + 1)(\tau_1^2 p^2 + f_1 p + 1) \dots (T_n p + 1)(\tau_n^2 p^2 + f_n p + 1) \\ g_0 = K_1 K_2 \dots K_n \end{cases}$$

La chaîne amplificatrice est, d'autre part, munie d'un circuit de réaction négative de taux r et l'on obtient un schéma identique dans son principe à celui de la figure 13.

Ordres de grandeur respectifs des paramètres T, f, τ. Conséquence. — La puissance disponible au sein d'un étage donné croissant rapidement avec le rang de l'étage considéré, les pièces fixes ou mobiles sont plus lourdes ou plus volumineuses au fur et à mesure que l'on progresse le long de la chaîne amplificatrice vers l'étage de sortie. Il en résulte que les inégalités suivantes sont valables dans la plupart des cas :

$$T_1 \ll T_2 \ll \dots \ll T_n, \quad \tau_1 \ll \tau_2 \ll \dots \ll \tau_n, \quad f_1 \ll f_2 \ll \dots \ll f_n.$$

De plus, la constante de temps T d'un étage l'emporte en général très nettement sur la pseudo-période du ressort antagoniste, voisine de $2\pi\tau$ et nous admettrons donc, pour chaque étage, les inégalités :

$$\tau \text{ et } f \ll T.$$

On montre que, dans ces conditions, seuls les paramètres des deux derniers étages interviennent de façon sensible lorsque l'on calcule les racines des parties réelle et imaginaire de $f(p)$. L'impédance symbolique de transfert se réduit pratiquement à un polynôme de degré 4, que l'on peut écrire :

$$f(p)/g_0 = 1 + T_n p + \varepsilon_2 T_n^2 p^2 + (\varepsilon_3)^2 T_n^3 p^3 + (\varepsilon_4)^3 T_n^4 p^4 \qquad \text{(III,2)}$$

où les ε désignent les rapports généralement du même ordre de grandeur (5 à 10 p. 100) :

$$\varepsilon_2 = \frac{T_{n-1} + f_n}{T_n}, \qquad \varepsilon_3 = \left[\frac{\tau_n^2 + T_{n-1} f_n}{T_n^2}\right]^{\frac{1}{2}}, \qquad \varepsilon_4 = \left[\frac{\tau_n^2 T_{n-1}}{T_n^3}\right]^{\frac{1}{3}}.$$

Limite d'accrochage de la réaction négative proportionnelle. — Lorsque x croît à partir de 0, $B(x)$ s'annule pour la première fois au voisinage de $\frac{1}{(\varepsilon_3 T_n)^2}$. A cette racine correspond une valeur de $A(x_0)$ sensiblement égale en module à $\frac{\varepsilon_2}{(\varepsilon_3)^2} - \frac{(\varepsilon_4)^3}{(\varepsilon_3)^4}$. On vérifie que les racines suivantes de $B(x)$ sont d'un ordre de grandeur beaucoup plus élevé, et les ordonnées correspondantes $|A(x)|$ sont de ce fait très supérieures à $|A(x_0)|$.

$|A(x_0)|$ est donc égale à $r_0 g_0$, et fixe ainsi la limite d'accrochage du taux r de réaction appliquée à l'amplificateur considéré. Compte tenu des valeurs explicitées plus haut de $\varepsilon_2\varepsilon_3\varepsilon_4$, $r_0 g_0$ s'écrit :

$$\boxed{r_0 g_0 = T_n f_n \frac{(T_{n-1}^2 + \tau_n^2) + T_{n-1} f_n}{(\tau_n^2 + T_{n-1} f_n)^2}} \qquad \text{(III,3)}$$

Seules interviennent dans cette expression les capacités des deux derniers étages et les paramètres du ressort de l'étage de sortie.

Application : rôle important de l'amortissement de l'étage de sortie. — T_n, T_{n-1} et τ_n *étant donnés, on peut chercher, en modifiant l'amortissement* f_n *de l'étage de sortie, à augmenter* $r_0 g_0$. La dérivée $\frac{dr_0 g_0}{df_n}$ ayant pour expression :

$$\frac{d(r_0 g_0)}{df_n} = T_n \frac{\tau_n^2 (T_{n-1}^2 + \tau_n^2) - T_{n-1}(T_{n-1}^2 - \tau_n^2) f_n}{(\tau_n^2 + T_{n-1} f_n)^3}$$

on doit distinguer deux cas, suivant que τ_n est supérieur ou inférieur à T_{n-1}.

1° *Si* $T_{n-1} < \tau_n$, $\frac{dr_0 g_0}{df_n}$ est positif, quel que soit f_n, et l'on doit donc augmenter l'amortissement du ressort de sortie dans toute la mesure des possibilités pratiques. La valeur critique $r_0 g_0$, qui croît avec f_n, reste dans ce cas inférieure à $\frac{T_n}{T_{n-1}}$.

2° *Si* $T_{n-1} > \tau_n$, $r_0 g_0$ passe, au contraire, par un maximum pour un temps d'amortissement fini :

$$f_n = \frac{\tau_n^2}{T_{n-1}} \frac{T_{n-1}^2 + \tau_n^2}{T_{n-1}^2 - \tau_n^2}. \tag{III,4}$$

Ce maximum a pour valeur :

$$\boxed{r_0 g_0 = \frac{T_n T_{n-1}}{4\tau_n^2} \left[1 + \left(\frac{\tau_n}{T_{n-1}}\right)^2\right]^2} \tag{III,5}$$

Pour évaluer le bénéfice que l'on peut tirer de cette nouvelle circonstance, supposons qu'en allégeant le dispositif entraîné par le ressort de sortie, on soit parvenu à réduire τ_n d'une valeur voisine de T_{n-1} à $\frac{1}{6} T_{n-1}$. L'amortissement f_n étant sensiblement réglé à sa valeur optima $f_n \sim \frac{\tau_n^2}{T_{n-1}}$, la limite d'amorçage passe de moins de $\frac{T_n}{T_{n-1}}$ à un peu plus de $9\frac{T_n}{T_{n-1}}$: *elle est presque décuplée.*

Amélioration de la stabilité par l'adjonction d'une réaction dérivée. — Si l'on ne retient que les termes utiles, $A(x)$ et $B(x)$ se réduisent pratiquement à :

$$A(x) = 1 - \varepsilon_2 T_n^2 x + (\varepsilon_4)^3 T_n^4 x^2$$
$$B(x) = T_n - (\varepsilon_3)^2 T_n^3 x.$$

La parabole et la droite correspondantes sont portées sur la figure 19. Les deux cas de figures possibles sont représentés. Le cas 1 correspond à :

$$\left(\frac{1}{\varepsilon_3}\right)^2 < \frac{\varepsilon_2}{2(\varepsilon_4)^3},$$

le cas 2 à :

$$\left(\frac{1}{\varepsilon_3}\right)^2 > \frac{\varepsilon_2}{2(\varepsilon_4)^3}.$$

On reconnaît que la stabilité est favorisée par l'intervention d'une réaction dérivée de taux $h > 0$ dans le cas 1, de taux $h < 0$ dans le cas 2.

Les expressions des rapports $\varepsilon_2 \varepsilon_3^2 \varepsilon_4^3$ (p. 609) permettent de plus de préciser que l'appareil étudié ressort des cas 1 ou 2 suivant que :

$$f_n \frac{(\tau_n^2 + T_{n-1}^2) + T_{n-1} f_n}{\tau_n^2 T_{n-1}} > 1 \qquad \text{cas 1}$$

ou :

$$f_n \frac{(\tau_n^2 + T_{n-2}^2) + T_{n-1} f_n}{\tau_n^2 T_{n-1}} < 1 \qquad \text{cas 2}$$

Or, lorsque f_n est fixé à sa valeur optima, le premier membre des inégalités précédentes s'écrit : $\left[\frac{T_{n-1}^2 + \tau_n^2}{T_{n-1}^2 - \tau_n^2}\right]$. Il est supérieur à l'unité, et, par conséquent, *dans le cas d'un appareil bien conçu, c'est une réaction dérivée de taux* $h > 0$ *qu'il convient d'adopter.*

Recherche d'une réaction dérivée optima. Les deux aspects du problème. — Le problème se pose ici sous deux aspects distincts :

1er aspect : On dispose d'un appareil muni d'un ressort de sortie dont l'amortissement vérifie sensiblement la relation (III,4), et l'on cherche à améliorer la stabilité sans avoir la possibilité de modifier de façon notable les paramètres de ce ressort. *Il s'agit, dans ce cas, de perfectionner un appareil donné.*

2e aspect : On cherche, au contraire, *à concevoir* un appareil dont l'amortissement f_n et le taux de réaction dérivée soient définis *a priori* de manière à garantir au mieux la stabilité.

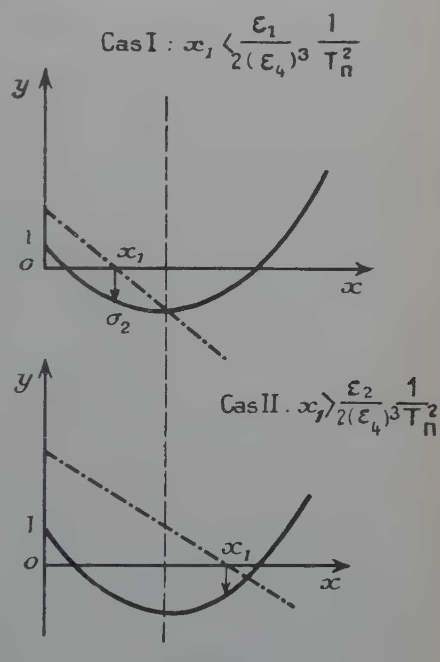


Fig. 19.

1er aspect : La discussion générale s'applique ici directement. Il est commode de poser $h = \alpha T_n$, et l'on déterminera alors α de telle sorte que la droite :

$$y = T_n[1 + \alpha - (\varepsilon_3)^2 T_n^2 x]$$

coupe l'axe des x de la figure (III,6) en x_1.

α devra vérifier $\frac{1+\alpha}{(\varepsilon^3)_2} = \frac{\varepsilon_2}{2(\varepsilon_4)^3}$, et la valeur critique $r_0 g_0$ correspondante s'écrira :

$$r_0 g_0 = |\, A(x_1)\, | \sim \varepsilon_2 \frac{\varepsilon_2}{2(\varepsilon_4)^3} - (\varepsilon_4)^3 \left[\frac{(\varepsilon_2)^2}{2(\varepsilon_4)^3}\right]^2 = \frac{3}{8}\frac{(\varepsilon_2)^2}{(\varepsilon_4)^3} = \frac{3}{8}\frac{(T_{n-1}+f_n)^2}{\tau_n^2 T_{n-1}} T_n .$$

Enfin, compte tenu de l'hypothèse faite que f_n vérifie la relation (III,4), il vient :

$$r_0 g_0 = \frac{3}{8}\frac{T_n T_{n-1}}{\tau_n^2}\left[\frac{1+\left(\frac{\tau_n}{T_{n-1}}\right)^4}{1-\left(\frac{\tau_n}{T_{n-1}}\right)^2}\right]^2 \qquad \text{(III,6)}$$

Le gain réalisé par rapport à la valeur-limite (III,5) est appréciable. Si l'on suppose encore $\frac{\tau_n}{T_{n-1}}$ égal à $\frac{1}{6}$, *il dépasse 100 p. 100.*

2ᵉ *aspect :* On doit, dans ce cas, tenir compte du fait que la valeur optima du temps f_n est modifiée par l'introduction de la correction dérivée.

Ne retenant que le cas le plus intéressant : $\tau_n < T_{n-1}$, il apparaît que $r_0 g_0$ est maximum, α étant donné, lorsque :

$$f_n(\alpha) = \frac{T_{n-1}^2(1+2\alpha)+\tau_n^2}{T_{n-1}^2-\tau_n^2}\frac{\tau_n^2}{T_{n-1}} .$$

Ce maximum s'exprime ainsi :

$$[r_0 g_0]_M = \frac{T_n T_{n-1}}{4\tau_n^2(1+\alpha)} \left\{ \left[1+\left(\frac{\tau_n}{T_{n-1}}\right)^2\right]^2 + \left[1+6\left(\frac{\tau_n}{T_{n-1}}\right)^2+\left(\frac{\tau_n}{T_{n-1}}\right)^4\right]\alpha + 4\left(\frac{\tau_n}{T_{n-1}}\right)^2\alpha^2 \right\}$$

On constate ainsi que $r_0 g_0$ est une fonction croissante de α. Il convient donc de prévoir l'application d'une réaction dérivée de taux $h = \alpha T_n$ en principe aussi élevé que possible. Toutefois le facteur d'amortissement f_n du ressort de sortie doit être pris de plus en plus grand au fur et à mesure que l'on augmente α. Or, on ne peut dépasser dans cette voie le domaine des valeurs de f_n relativement faibles devant T_n sans sortir du cadre des hypothèses (2), hors duquel les calculs précédents n'ont plus de sens.

Perturbations apportées par les phénomènes de propagation.

(L'impédance de transfert de l'installation est une fonction entière).

Exemple concret : Réglage d'un titre après dilution. — Le principe est illustré par le schéma de la figure 20. Dans la cuve C, arrivent simultanément :

a) une liqueur concentrée en un produit P, par exemple acide, dont le titre θ_1 et le débit en masse q_1 sont éventuellement sujets à des irrégularités ;

b) de l'eau destinée à assurer une dilution convenable du produit P.

Il arrive parfois que la liqueur S, déversée en A_1 à la sortie de la cuve à niveau constant C, soit astreinte à circuler dans une tubulure

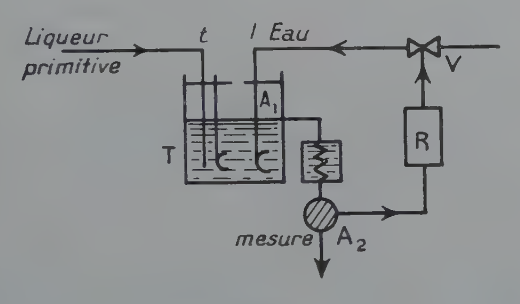


Fig. 20.

plus ou moins longue avant que son titre θ puisse être détecté en A_2. Si, par exemple, il s'agit de diluer une solution primitivement concentrée d'acide sulfurique, dont le titre final est continûment mesuré par une méthode électrique, il peut être nécessaire, avant d'opérer la mesure, de refroidir la solution élaborée en C, tout au moins d'assurer son équilibre thermique à une température donnée.

Le titre θ est la grandeur à régler à la valeur de consigne θ_0, et le débit en masse d'eau q commandé par la vanne V, est pris comme grandeur de réglage. Nous désignerons par ailleurs par m la masse de liquide pratiquement fixe continue dans la cuve C, et par τ le temps mis par la solution S pour circuler de A_1 à A_2. Enfin, le brassage de la cuve est supposé suffisant pour assurer l'homogénéité de son contenu.

Calculant l'impédance de transfert en posant $\varepsilon = \frac{\Delta\theta}{\theta_0}$, $\eta = \Delta q/q$, on trouve d'abord :

$$\left(T\frac{d}{dt} + 1\right)\varepsilon(t) = -g_0\eta(t) \quad \text{avec} \quad T = \frac{m}{q+q_1} \quad \text{et} \quad g_0 = \frac{q}{q+q_1}.$$

Mais ε désigne la variation du titre θ en A_1, alors que l'appareil de mesure ne la décèlera en A_2 que τ secondes plus tard. A l'époque t, le régulateur transmet donc à la vanne de réglage V un signal déterminé par le déréglage en A_1 à l'époque $t - \tau$. Comme l'origine des temps coïncide avec le début de la perturbation, la transformée de Laplace de $\varepsilon\,(t-\tau)$ se calcule ainsi :

$$\int_{0-}^{\infty} e^{-pt}\varepsilon(t-\tau)dt = e^{-p\tau}\int_{-\tau}^{\infty}\varepsilon(s)e^{-ps}ds = e^{-p\tau}\varepsilon(p).$$

L'équation du circuit de régulation doit s'écrire, dans ces conditions :

$$[(Tp+1)e^{p\tau} + g_0R(p)]\varepsilon(p) = (Tp+1)e^{\tau p}\varepsilon_0(p).$$

L'apparition du facteur $e^{\tau p}$ dans l'impédance symbolique est liée à l'existence du temps τ mis par la grandeur θ pour se propager sans modification de A_1 en A_2.

Discussion de la stabilité du réglage d'une installation dont l'impédance de transfert est du type précédent : $\frac{1}{g_0}f(p) = \frac{1}{g_0}(Tp+1)e^{\tau p}$. — Cette discussion s'applique au réglage de toutes les installations que l'on peut caractériser par une constante de temps dominante T (cas très courant), lorsque l'action régulatrice est transmise avec un retard fixe τ.

Explicitons les parties réelle et imaginaire de $f(j\omega)$ en fonction de la variable $x = \tau\omega$, qu'il est plus commode d'adopter ici :

$$A(x) = \cos x - \left(\frac{T}{\tau}\right)x\sin x \qquad \text{partie réelle}$$

$$B(x) = \sin x + \left(\frac{T}{\tau}\right)x\cos x \qquad \text{partie imaginaire}$$

On vérifie sans peine que les racines $A(x)$ et $B(x)$ forment deux suites infinies entrelacées, et la méthode de fusion des racines s'applique par conséquent à l'étude de la stabilité du réglage.

Réglage par action proportionnelle. — r_0 désignant comme plus haut le taux d'accrochage dans le cas où la régulation proportionnelle est employée seule, les deux équations :

$$\cos x - \frac{T}{\tau}x\sin x + rg_0 = 0$$

$$\sin x + \frac{T}{\tau}x\cos x = 0$$

admettent une racine commune x_0. Si $\frac{T}{\tau}$ n'est pas nul, celle-ci n'annule ni $\sin x$ ni $\cos x$; il est donc légitime de déduire du système ci-dessus :

$$\frac{1}{\cos x_0} = -\frac{\frac{T}{\tau} x_0}{\sin x_0} = \frac{\cos x_0 - \frac{T}{\tau} x_0 \sin x_0}{\cos^2 x_0 + \sin^2 x_0} = -r_0 g_0$$

puis :

$$\cos x_0 = -\frac{1}{r_0 g_0} \qquad \text{et} \qquad \sin x_0 = \frac{T}{\tau} \frac{x_0}{r_0 g_0}.$$

La racine x_0 satisfait donc à l'équation :

$$1 + \left(\frac{T}{\tau}\right)^2 x^2 = r_0^2 g_0^2.$$

Les valeurs de r_0 que l'on est ainsi conduit à envisager forment une suite croissant avec x. Comme le seul nombre de cette suite que l'on doive finalement retenir est le plus petit d'entre eux, il en résulte que *c'est la plus faible des racines positives de* B(x) *qui seule intéresse la détermination du taux* r_0 *d'amorçage des oscillations* [1].

Cette propriété apporte dans cet exemple comme dans l'exemple n° 2 du premier paragraphe, une simplification évidemment capitale dans la conduite de la discussion. Nous avions déjà signalé et exploité, dans le courant du chapitre II, le fait que l'on bénéficie très souvent de cette circonstance en pratique. Nous la retrouverons d'ailleurs de façon systématique dans les problèmes de transmission de chaleur.

La limite critique $r_0 g_0$ étant sensiblement égale à 1 pour les très faibles valeurs de $\frac{T}{\tau}$, on conclut que l'*action régulatrice proportionnelle employée seule ne devient véritablement intéressante que dans le domaine des valeurs notables de* $\frac{T}{\tau}$, *c'est-à-dire lorsque la durée de la propagation est nettement inférieure à la constante de temps* T *de l'installation.*

Dans ce dernier cas, le coefficient de régulation est de l'ordre de $\frac{T}{\tau}\frac{\pi}{2}$, son expression exacte étant :

$$1 + r_0 g_0 = 1 + \sqrt{1 + \left(\frac{T}{\tau} x_0\right)^2} \qquad \text{avec} \qquad x_0 \sim \frac{\pi}{2}.$$

Réglage par action intégrale. — Lorsque la correction intégrale agit seule, la fonction régulatrice s'identifie à $\frac{k}{p}$. L'amorçage des

[1] Dans les limites où $\frac{T}{\tau}$ serait nul, la fusion s'opérerait simultanément sur toutes les racines.

oscillations entretenues se produit, dès que k est assez élevé pour provoquer la fusion de deux racines des équations :

$$\cos x - \frac{T}{\tau} x \sin x = 0$$

$$\sin x + \frac{T}{\tau} x \cos x - \frac{\tau k g_0}{x} = 0.$$

Il est commode de poser $k g_0 = \frac{\beta}{\tau}$ et de rechercher la limite d'accrochage β_0 de β. Si l'on suppose $\frac{T}{\tau} \neq 0$, on déduit alors du système précédent :

$$\frac{1}{\sin x} = \frac{\left(\frac{T}{\tau}\right)x}{\cos x} = \frac{\sin x + \left(\frac{T}{\tau}\right)x \cos x}{\sin^2 x + \cos^2 x} = \frac{\beta_0}{x}$$

et, par suite :

$$x^2\left[1 + \left(\frac{T}{\tau}x\right)^2\right] = \beta_0^2. \qquad \text{(III,8)}$$

Le raisonnement effectué à propos de l'action proportionnelle s'applique encore : il montre encore que, *seule, la plus petite racine positive* x_0' *de* $A(x)$ *intéresse la détermination de la limite* β_0 *d'amorçage des oscillations.*

Les racines de $A(x)$ satisfaisant à l'équation $\cot x = Tx/\tau$, x_0' décroît de $\frac{\pi}{2}$ à 0 quand $\frac{T}{\tau}$ croît de 0 à l'infini. Il s'agit donc d'oscillations de fréquence relativement basse.

La limite β_0 est de l'ordre de x_0 (équation (III,8), c'est-à-dire de $\frac{\pi}{2}$ *pour les faibles valeurs du rapport* $\frac{T}{\tau}$. La constante de temps $\frac{\tau}{\beta}$ qui détermine la rapidité d'action du réglage intégral peut donc être réduite jusqu'à la valeur $\frac{\tau}{1{,}57}$. On s'en tient en fait à des valeurs plus élevées, afin de conserver un degré de stabilité suffisant, mais le résultat établi montre que le *réglage par action intégrale constitue la correction régulatrice de choix lorsque l'influence des phénomènes de propagation sans déformation est dominante.*

Amélioration de la stabilité du réglage intégral par l'intervention de corrections auxiliaires. — Nous étudierons ici le seul cas où $\frac{\tau}{T}$ est négligeable.

Désignons par $\beta_0(r)$ la limite critique de β, lorsque l'on introduit une action proportionnelle de taux r. Les deux équations :

$$\cos x + r g_0 = 0 \qquad \sin x - \frac{\beta_0(r)}{x} = 0$$

admettent une racine commune x_0', qui vérifie par ailleurs :

$$x_0'(1 - \overline{rg}_0^2) = \beta_0^2(r).$$

Seule, la plus petite racine positive de l'équation cos $x + rg_0 = 0$ *détermine* $\beta_0(r)$. On voit de plus que cette racine $x_0'(r)$ se déplace vers les $x > 0$ quand rg_0 croît de 0 à 1. Le signe de $\frac{d\beta_0}{dx_0'}$ étant le même que celui de $\frac{d\beta_0(r)}{dx'}$, $\beta_0(r)$ sera maximum quand $\frac{d\beta_0}{dx_0'}$ s'annulera. Or :

$$\frac{d\beta_0}{dx_0'} = \frac{\delta\beta_0}{\delta x_0'} + \frac{\delta\beta_0}{\delta(rg_0)}\frac{drg_0}{dx_0'} = \sqrt{1 - \overline{rg}_0^2} - \frac{x_0' rg_0}{\sqrt{1 - \overline{rg}_0^2}}$$

soit, puisque cos $x_0' = -rg_0$:

$$\frac{d\beta_0}{dx_0'} = \sin x_0' + x_0' \frac{\cos x_0'}{\sin x_0'}.$$

On trouve ainsi que $\beta_0(r)$ est maximum pour une valeur de $x_0'(r)$ voisine de 2, à laquelle correspond :

$$rg_0 \simeq 0{,}4 \qquad \text{et} \qquad \beta_0(r) \simeq 1{,}8.$$

CHAPITRE IV

INFLUENCE DE LA TRANSMISSION DE LA CHALEUR SUR LA STABILITÉ DES RÉGLAGES THERMIQUES

Réalité des racines de l'impédance de transfert.

La méthode de fusion des racines paraît adaptée à l'étude des réglages thermiques. — Dans le cas des réglages de température, l'action régulatrice consiste à modifier dans le sens convenable le flux de chaleur transmis à l'élément E à régler. Le flux correcteur, positif ou négatif, ainsi superposé par l'action spécifique du régulateur, ne parvient généralement à l'élément E, qu'après avoir traversé une série de milieux solides ou fluides, dont il modifie progressivement la température. Nous nous proposons, dans ce chapitre, d'étudier dans quelle mesure la stabilité du réglage se trouve affectée par ce processus de transmission.

A l'intérieur d'un milieu pratiquement homogène, le flux de chaleur est déterminé, nous l'admettrons, par le gradient local de température, auquel il est proportionnel. A la frontière d'un tel milieu, par contre, on doit souvent introduire un coefficient de transmission K

qui fait correspondre un flux de chaleur fini à un gradient de température presque infini. Cette discontinuité apparente est particulièrement marquée au contact d'un solide et d'un fluide animé d'un mouvement turbulent : le gradient de température est alors localisé dans une couche laminaire « thermique » au voisinage immédiat de la surface de séparation (11).

L'impédance de transfert d'une installation donnée sera le reflet du phénomène global de transmission. Elle dépendra d'une part des lois de transmission de la chaleur au sein même des divers éléments qui constituent l'installation et, d'autre part, des conditions aux limites, qui déterminent l'état thermique des surfaces de chaque élément.

L'objet des trois premières parties de ce chapitre (p. 39 à 47) est d'établir que, dans des conditions très générales, les racines de l'impédance de transfert sont réelles. L'intérêt principal de ce résultat réside dans sa conséquence suivante :

La fusion des racines qui limite le domaine de stabilité des réglages classiques intéresse systématiquement les plus faibles des racines positives des fonctions $A(\omega)$ et $B(\omega)$.

Ce corollaire, dont la démonstration (3) ne sera pas répétée ici afin de ne pas alourdir l'exposé, assure la simplicité de la méthode de discussion adoptée.

Dans la quatrième partie du chapitre, nous appliquons les résultats obtenus à un exemple de réglage thermique.

Principe de la méthode utilisée pour montrer la réalité des racines de l'impédance de transfert. — Indiquons le principe de la méthode que nous développons plus loin (p. 620 et 626), en supposant que la transmission de la chaleur s'effectue à travers une paroi homogène E (paroi réfractaire d'un four, tube d'un échangeur, etc.) limitée par ses faces externe S_1 et interne S_2. Le milieu externe E_c sera considéré comme milieu chaud.

Le flux de chaleur provenant de E_c est donc transmis à travers tout ou partie de la surface S_1 vers S_2, puis directement ou indirectement à l'élément de sortie E_s de l'installation, dont la température Θ_s est l'objet du réglage.

La grandeur de réglage choisie est généralement soit le débit du fluide chaud circulant dans E_c, soit le débit du combustible, dans le cas du chauffage par une flamme élaborée dans une chambre de combustion, soit encore une puissance électrique. Nous désignerons par Q la valeur de cette grandeur de réglage en régime permanent, par q ses variations.

Soient μ et γ la masse et la chaleur spécifiques de E, λ le coefficient de proportionnalité du flux de chaleur au gradient de température, et $\Theta(M, t)$ la température au point courant de E_1.

$\Theta(M, t)$ est une intégrale de l'équation aux dérivées partielles :

$$\lambda . \Delta\Theta = \mu . \gamma \frac{\partial\Theta}{\partial t} .$$

Par conséquent :

1) Si la température observée résulte de la superposition d'une perturbation $\theta(M, t)$ au régime permanent initial : la transformée de Laplace $\theta(M, p)$ de $\theta(M, t)$ vérifie, lorsque les variations de λ avec Θ sont négligeables :

$$\lambda . \Delta\theta = \mu\gamma . p . \theta. \qquad \text{(IV,1)}$$

2) Lorsque l'on donne à p la valeur complexe $\alpha + j\omega$, $\theta(M, p)$ peut alors être décomposé en parties réelle et imaginaire $u + jv$ et l'équation (IV,1) doit être dédoublée elle aussi. Des deux équations obtenues, on déduit facilement, en appliquant la formule de Green aux deux fonctions u et v dans le domaine E_1, après avoir orienté les normales $\overrightarrow{n}$ à S_1 et S_2 vers le milieu chaud.

$$\left.\begin{aligned}\iint_{S_1}\left(v\frac{\delta u}{\delta n} - u\frac{\delta v}{\delta n}\right)dS - \iint_{S_2}\left(v\frac{\delta u}{\delta n} - u\frac{\delta v}{\delta n}\right)dS \\ = -\,\omega\iiint\frac{\mu\gamma}{\lambda}(u^2 + v^2)dV.\end{aligned}\right\} \qquad \text{(IV,2)}$$

Or la forme de cette relation la rend propre à montrer la réalité d'une racine en p de l'impédance de transfert. Il suffit de vérifier que les conditions aux limites sur S_1 et S_2 sont incompatibles avec une valeur non nulle de ω.

Le régulateur étant hors circuit, partons d'un régime stationnaire de températures (notées Θ), correspondant à la valeur Q du paramètre de réglage, et modifions ce paramètre à partir de la date $t = 0$, suivant une loi quelconque $Q + q(t)$, les variations $\frac{q}{Q}$ restant faibles. Il en résulte une variation $\theta(M, t)$ de toutes les températures au sein de l'installation, et, finalement, à l'extrémité de la chaîne de transmission de la chaleur, une variation $\theta_S(t)$ de la température réglée.

L'*impédance de transfert* est, à un facteur près, que nous ne faisons pas figurer ici :

$$Z(p) = \frac{q(p)}{\theta_S(p)} .$$

Soit p_0, *une racine de* $Z(p)$, m son ordre de multiplicité. Prenons comme fonction particulière $q(p)$ l'expression $(p - p_0)^m . \frac{Z(p)}{(p - p_0)^m}$ admet alors une limite finie lorsque $p = p_0$, c'est-à-dire lorsque $q(p) = 0$. Il en résulte que la fonction $\theta(p_0, M)$ est régulière dans le domaine défini par l'élément E_1, et l'on peut lui appliquer la formule de Green dont la relation (IV,2) découle.

Le problème proposé revient donc à montrer que cette relation est incompatible avec les deux conditions : $\omega \neq 0$, $q(\alpha + j\omega) = 0$.

Il est évidemment suffisant de démontrer que, lorsque $q = 0$, *les conditions habituelles de transmission de la chaleur à travers les parois* S_1 *et* S_2 *entraînent séparément :*

$$\iint_{S_1}\left(v\frac{\delta u}{\delta n} - u\frac{\delta v}{\delta n}\right)dS_1 = K_1\omega \qquad \text{(IV,3)}$$

$$\iint_{S_2}\left(v\frac{\delta u}{\delta n} - u\frac{\delta v}{\delta n}\right)dS_2 = -K_2\omega \qquad \text{(IV,4)}$$

K_1 et K_2 désignant deux coefficients réels positifs.

C'est à cette méthode que nous aurons recours. Nous distinguerons en l'appliquant deux cas, suivant que le gaz ou le liquide baignant la face considérée de l'élément E_1 est ou non à température uniforme.

La température des fluides en contact avec les parois est uniforme.

Cas d'une seule paroi homogène. — TRANSMISSION DE LA CHALEUR A TRAVERS LA FACE D'ENTRÉE S_1. — Le fluide chaud peut entraîner avec lui une multitude de particules en suspension (cas de la flamme), mais nous admettons de façon générale que l'élément chauffant E_c est d'une mobilité suffisante pour que sa température soit pratiquement uniforme. Nous noterons sa masse m, sa chaleur spécifique à pression constante C et sa température moyenne Θ_c en régime stationnaire, $\Theta_c + \theta_c(t)$ en régime variable.

En un point M de S_1, dont la température est $\Theta_1(M)$ (1) la chaleur transmise par unité de temps et de surface, est, en régime stationnaire, de la forme :

$$H(M, \Theta_c, \Theta_1)[\Theta_c - \Theta_1] = \lambda\frac{\partial\Theta_1}{\partial n} \qquad \text{(IV,5)}$$

H désigne un coefficient global de transmission comprenant éventuellement les contributions des chaleurs transmises par rayonnement et convection. Il dépend d'abord de Θ_c et Θ_1 (dans le cas du rayonnement, H varie comme $\dfrac{\Theta_c^4 - \Theta_1^4}{\Theta_c - \Theta_1}$), et même du débit Q du

(1) Il est indispensable de tenir compte des inégalités de température d'un point à un autre de la paroi. Celles-ci peuvent être très importantes dans le cas d'un élément réfractaire. Mais on montre, en outre, qu'en régime transitoire, *cette inégalité est inévitable, même dans le cas d'une paroi conductrice, si les surfaces extrêmes ne sont pas*, en pratique, *des cylindres de révolution coaxiaux ou des sphères.*

fluide ou du combustible, c'est-à-dire de la grandeur de réglage, mais il est aussi fonction de M, car la chaleur reçue par rayonnement dépend de la position de M, et surtout, de l'orientation de la paroi S_1 au voisinage de M.

Nous pouvons déduire de (IV,5) la relation valable en régime variable dans laquelle :

$$\left.\begin{aligned} h_c\theta_c - h_1\theta_1 &= \lambda \frac{\partial \theta_1}{\partial n} \\ h_c &= H + [\Theta_c - \Theta_1] \frac{\partial H}{\partial \Theta_c} \\ h_1 &= H - [\Theta_c - \Theta_1] \frac{\partial H}{\partial \Theta_1} \end{aligned}\right\} \qquad \text{(IV,6)}$$

h_c et h_1 sont des coefficients qui dépendent de M mais sont essentiellement > 0, car le flux transmis à travers S_1 croît avec Θ_c et décroît avec Θ_1.

Les bilans comparés des échanges de chaleur en régimes variable et stationnaire fournissent par différence une équation qui se présente sous la forme générale :

$$\varphi dt = \int\int_{S_1} \lambda \frac{\partial \theta}{\partial n} dS dt + mC d\theta_c + a_f \theta_c dt \qquad \text{(IV,7)}$$

φdt désigne la fraction variable du flux de chaleur dégagé par le milieu chauffant pendant l'intervalle de temps t, $t + dt$, fraction qui résulte de la variation $q(t)$ imposée au paramètre de réglage. a_f désigne un coefficient de perte de chaleur vers l'extérieur.

Au deuxième ordre près en $\frac{q}{Q}$, φ peut être considéré comme proportionnel à q, et l'équation (IV,7) devient ainsi :

$$K . q(p) = \int\int_{S_1} \lambda \frac{\partial \theta_1}{\partial n} dS + mCp . \theta_c + a_f \theta_c. \qquad \text{(IV,8)}$$

Soit $p_0 = \alpha + j\omega$ une racine complexe d'ordre m de l'impédance de transfert $Z(p)$, et soient $\theta = u + jv$, $\theta_1 = u_1 + jv_1$ les expressions correspondantes des températures. Prenons $q(p) = (p - p_0)^m$; lorsque $p = p_0$, les égalités (IV,6) et (IV,8), décomposées en partie réelle et partie imaginaire, s'écrivent :

$$\text{I}\left\{\begin{aligned} h_c u_c - h_1 u_1 &= \lambda \frac{\partial u_1}{\partial n} \\ h_c v_c - h_1 v_1 &= \lambda \frac{\partial v_1}{\partial n} \end{aligned}\right. \quad \text{II}\left\{\begin{aligned} \int\int_{S_1} \lambda \frac{\partial u_1}{\partial n} dS + a_f u_c + mC(\alpha u_c - \omega v_c) &= 0 \\ \int\int_{S_1} \lambda \frac{\partial v_1}{\partial n} dS + a_f v_c + mC(\alpha v_c + \omega u_c) &= 0 \end{aligned}\right\} \qquad \text{(IV,9)}$$

Nous pouvons déduire :

1) du groupe II, en utilisant les multiplicateurs v_c et $-u_c$:

$$\int\int_{S_1} \lambda \left(v_c \frac{\partial u_1}{\partial n} - u_c \frac{\partial v_1}{\partial n}\right) dS = mC\omega(v_c^2 + u_c^2) ; \qquad \text{(IV,10)}$$

2) du groupe I, en utilisant successivement les multiplicateurs v_c, $-u_c$, puis v_1, $-u_1$:

$$h_1(v_1u_c - u_1v_c) = \lambda\left(v_c \frac{\partial u_1}{\partial n} - u_c \frac{\partial u_1}{\partial n}\right) \qquad (IV,11)$$

$$h_c(v_1u_c - u_1v_c) = \lambda\left(v_1 \frac{\partial u_1}{\partial n} - u_1 \frac{\partial v_1}{\partial n}\right). \qquad (IV,12)$$

En comparant les relations (IV,10), (IV,11) et (IV,12), on obtient alors :

$$\iint_{S_1} \lambda \frac{h_1}{h_c}\left(v_1 \frac{\partial u_1}{\partial n} - u_1 \frac{\partial v_1}{\partial n}\right) dS = \omega \, . \, mC(u_c^2 + v_c^2). \qquad (IV,13)$$

La relation (IV,13) *a bien la forme* (IV,3).

Transmission de la chaleur a travers la face de sortie S_2. — La face S_2 peut être soit en contact direct avec l'élément E_s dont on se propose de régler la température (cas d'un liquide à vaporiser par exemple), soit séparée de lui par une atmosphère gazeuse dont la capacité calorifique est généralement négligeable (cas d'un four chauffant une charge solide). Pour couvrir les deux cas, nous admettons l'existence d'une atmosphère à la température uniforme Θ. La température Θ_s de la charge, de capacité calorifique Γ_s, est considérée, elle aussi, comme uniforme. S'il en était autrement, la transmission progressive de la chaleur intéresserait deux éléments en cascade : il s'agit d'une généralisation du problème actuel, que nous traiterons au paragraphe suivant.

Comme précédemment, les bilans des échanges de chaleur se décomposent en une partie stationnaire et une partie variable, qui résulte de la perturbation $q(t)$. On obtient, avec des notations qui apparaîtront évidentes par comparaison avec celles du paragraphe précédent :

En régime permanent :

$$\lambda \frac{\partial \Theta_2}{\partial n} = H_2(M, \Theta_2, \Theta)[\Theta_2 - \Theta]$$
$$\iint_S \lambda \frac{\partial \Theta_2}{\partial n} dS = K_s(\Theta - \Theta_s)$$
$$\iint_{S_2} \lambda \frac{\partial \Theta_2}{\partial n} dS = F(\Theta_s, \ldots).$$

Le terme $F(\Theta_s, \ldots)$ représente soit le flux de chaleur transmis au milieu ambiant par la charge E_s en équilibre thermique, soit, plus souvent, un flux de chaleur utile ; chaleur absorbée par la charge d'un four à marche continue, par la vaporisation de l'eau d'une chaudière, par une réaction chimique, etc. La fonction F peut dépendre, en dehors de Θ_s, d'un certain nombre d'autres paramètres indépendants de Θ_s, mais nous n'avons pas à nous en préoccuper ici, car les variations éventuelles de ces paramètres *ne résultent pas* des variations imposées à la grandeur de réglage.

En régime variable, on obtient par comparaison avec le régime stationnaire initial :

$$\lambda \frac{\partial \theta_2}{\partial n} = h_2\theta_2 - h\theta, \quad \text{avec} \quad h_2 = H_2 + (\Theta_2 - \Theta)\frac{\partial H_2}{\partial \Theta_2}$$
$$h = H_2 - (\Theta_2 - \Theta)\frac{\partial H_2}{\partial \Theta}$$
$$\lambda \frac{\partial \theta}{\partial n} dS = k\theta - k_s\theta_s = a\theta_s + \Gamma_s p\theta'_s,$$

avec :

$$k = K_s + \frac{\partial K_s}{\partial \Theta}(\Theta - \Theta_s), \qquad k_s = K_s - \frac{\partial K_s}{\partial \Theta_s}(\Theta - \Theta_s), \qquad a = \frac{\partial F}{\partial \Theta_s}.$$

Les coefficients k, k_s et a sont positifs.

Soit, comme précédemment, $p_0 = \alpha + j\omega$ une racine complexe de l'impédance de transfert. Les équations ci-dessus deviennent, lorsque $p \to p_0$:

$$\left.\begin{array}{l} \text{I} \left\{ \begin{array}{l} h_2u_2 - hu = \lambda \dfrac{\partial u_2}{\partial n} \\ h_2v_2 - hv = \lambda \dfrac{\partial v_2}{\partial n} \end{array} \right. \\ \text{II} \left\{ \begin{array}{l} \displaystyle\iint_{S_2} \lambda \frac{\partial u_2}{\partial n} dS = ku - k_su_s = au_s + \Gamma_s(\alpha u_s - \omega v_s) \\ \displaystyle\iint_{S_2} \lambda \frac{\partial v_2}{\partial n} dS = kv - k_sv_s = av_s + \Gamma_s(\alpha v_s + \omega u_s) \end{array} \right. \end{array} \right\} \quad \text{(IV,9 bis)}$$

Nous pouvons déduire :

1) du groupe II, en utilisant les multiplicateurs $v_s, -u_s$:

$$\iint_{S_2} \lambda\left(v_s \frac{\partial u_2}{\partial n} - u_s \frac{\partial v_2}{\partial n}\right) dS = k(uv_s - vu_s) = -\Gamma_s\omega(v_s^2 + u_s^2)$$

puis, avec les multiplicateurs $v, -u$:

$$\iint_{S_2} \lambda\left(v \frac{\partial u_2}{\partial n} - u \frac{\partial v_2}{\partial n}\right) dS = k_s(uv_s - vu_s)$$

soit, en vertu de l'équation précédente :

$$\iint_{S_2} \lambda\left(v \frac{\partial u_2}{\partial n} - u \frac{\partial v_2}{\partial n}\right) dS = -\frac{k_s}{k}\Gamma_s\omega(u_s^2 + v_s^2)\,; \qquad \text{(IV,14)}$$

2) du groupe I, en utilisant les multiplicateurs $v, -u$, puis $v_2, -u_2$:

$$h_2(vu_2 - uv_2) = \lambda\left(v \frac{\partial u_2}{\partial n} - u \frac{\partial v_2}{\partial n}\right) \qquad \text{(IV,15)}$$

$$-h(v_2u - u_2v) = \lambda\left(v_2 \frac{\partial u_2}{\partial n} - u_2 \frac{\partial v_2}{\partial n}\right). \qquad \text{(IV,16)}$$

Les relations (IV,14, 15 et 16) entraînent alors :

$$\boxed{\iint_{S_2} \lambda\left(v_2 \frac{\partial u_2}{\partial n} - u_2 \frac{\partial v_2}{\partial n}\right) dS = -\omega \frac{k_s}{k}\frac{h}{h_2}\Gamma_s(u_s^2 + v_s^2)} \qquad \text{(IV,17)}$$

La relation (IV,17) *est bien de la forme* (IV,4).

Cas où la chaleur doit traverser une série de milieux homogènes séparés ou non par des résistances thermiques. — Nous admettrons, dans ce paragraphe, que ces milieux E_1, E_2, ... sont, soit en contact direct, soit séparés par des fluides dont la température peut être considérée comme uniforme.

Les éléments successifs sont en contact, et la transmission de la chaleur de l'un a l'autre est continue. — Ce cas intéresse, par exemple, la condensation en film de la vapeur d'eau sur la paroi d'un échangeur : le condensat et le tube forment deux éléments superposés en contact sur la face commune à deux éléments consécutifs E_1 et E_2. Nous pouvons écrire, par continuité :

$$\theta_i(p) = \theta_{i+1}(p) \qquad \text{et} \qquad \frac{\partial \theta_i(p)}{\partial n} = \frac{\partial \theta_{i+1}(p)}{\partial n}. \qquad (IV,18)$$

Désignons encore par S_1 et S_2 les faces extrêmes du dispositif constitué par la superposition des divers éléments en contact : il résulte de (IV,18) que l'égalité fondamentale (IV,2) (p. 619) subsiste, à cette seule modification près que l'intégrale du second membre doit être remplacée par :

$$\iiint_{E_1 E_2 \ldots E_n} \sum_{i=1}^{i=n} \frac{\mu_i \gamma_i}{\lambda_i} (u_i^2 + v_i^2) dV \qquad \text{toujours} > 0.$$

Le problème actuel s'identifie donc exactement à celui que nous venons de traiter.

Les éléments successifs sont séparés par des milieux de capacité calorifique et de résistance thermique notables. — Nous envisageons une installation comportant un nombre quelconque d'éléments homogènes $E_1 E_2 \ldots E_k \ldots E_n$, à travers chacun desquels la transmission de la chaleur est progressive. Ils sont éventuellement séparés les uns des autres par un milieu (fluide généralement), dont la température peut être considérée comme uniforme. A chacun de ces éléments E_k, dont les faces sont désignées par S_k et S'_k, on peut faire correspondre une relation du type (IV,2) :

$$\iint_{S_k} \lambda_k \left(v_k \frac{\partial u_k}{\partial n} - u_k \frac{\delta v_k}{\delta n} \right) dS - \iint_{S'_k} \lambda_k \left(v' \frac{\partial u'_k}{\partial n} - u'_k \frac{\partial v'_k}{\partial n} \right) dS = -\omega I_k \quad I_k > 0.$$

Abrégeant les notations en posant $\iint_{S_k} \lambda_k \left(v_k \frac{\partial u_k}{\partial n} - u_k \frac{\delta v_k}{\delta n} \right) dS = z_k$, nous disposons donc de n équations :

$$K = 1, 2, \ldots n \qquad z_k - z'_k = -\omega I_k \qquad I_k > 0 \qquad (IV,19)$$

Pour démontrer la réalité des racines de l'impédance de transfert, il suffit d'établir une relation intéressant les faces extrêmes S_1, S'_n :

$$A_1 z_1 - A_n z'_n = -\omega I \qquad (IV,20)$$

où A_1A_nI sont des coefficients *réels* et *positifs*. Les conditions de la transmission à travers les faces extrêmes $S_1S'_n$ étant en effet les mêmes que précédemment, nous savons qu'elles sont incompatibles avec la relation (IV,20) si ω n'est pas nul.

Or, pour éliminer $z'_1z'_2 \ldots z'_{n-1}$, $z_2z_3 \ldots z_n$, afin d'obtenir une relation entre z_1 et z'_n, il faut disposer de $2n - 1$ équations. Nous obtiendrons les $n - 1$ relations supplémentaires en écrivant le bilan de la transmission de la chaleur à travers les $(n - 1)$ éléments intermédiaires.

Afin d'éviter la multiplication des indices, nous raisonnerons sur le premier milieu (R), de capacité calorifique Γ, intermédiaire entre les éléments E_1 et E_2 (fig. 21).

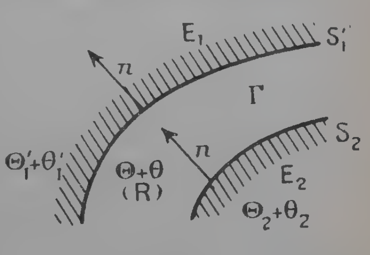


Fig. 21.

La répétition du raisonnement développé précédemment dans le cas d'une paroi unique conduit encore à des groupes de relations du type (IV,9) (lorsque l'on considère la face d'entrée S_2 de l'élément E_2) et (IV,9 *bis*) (lorsque l'on considère la face de sortie S'_1 de l'élément E_1). Avec des notations analogues, ces relations s'écrivent :

$$\text{I}\left\{\begin{aligned} h_1u'_1 - h'u &= \lambda_1 \frac{\partial u'_1}{\partial n} \\ h_1v'_1 - h'v &= \lambda_1 \frac{\partial v'_1}{\partial n}\end{aligned}\right. \qquad \text{II}\left\{\begin{aligned} h''u - h_2u_2 &= \lambda_2 \frac{\partial u_2}{\partial n} \\ h''v - h_2v_2 &= \lambda_2 \frac{\partial v_2}{\partial n}\end{aligned}\right.$$

$$\text{III}\left\{\begin{aligned} \iint_{S'_1}\lambda_1 \frac{\partial u'_1}{\partial n}\,dS - \iint_{S_2}\lambda_2 \frac{\partial u_2}{\partial n}\,dS &= (\alpha u - \omega v)\Gamma \\ \iint_{S'_1}\lambda_1 \frac{\partial v'_1}{\partial n}\,dS - \iint_{S_2}\lambda_2 \frac{\partial v_2}{\partial n}\,dS &= (\alpha v + \omega u)\Gamma.\end{aligned}\right.$$

On déduit successivement de ce système les relations suivantes :

du groupe III :

$$\left.\begin{aligned} -\iint_{S'_1}\lambda_1\left(v\frac{\partial u'_1}{\partial n} - u\frac{\partial v'_1}{\partial n}\right)dS + \iint_{S_2}\lambda_2\left(v\frac{\partial u_2}{\partial n} - u\frac{\partial v_2}{\partial n}\right)dS \\ = \omega(v^2 + u^2)\Gamma \end{aligned}\right\} \quad \text{(IV,21)}$$

puis des groupes I et II : 1) en utilisant d'abord les multiplicateurs v et $-u$:

$$\left.\begin{aligned} h_1(vu'_1 - v'_1u) &= \lambda_1\left(v\frac{\partial u'_1}{\partial n} - u\frac{\partial v'_1}{\partial n}\right), \\ h_2(v_2u - u_2v) &= \lambda_2\left(v\frac{\partial u_2}{\partial n} - u\frac{\partial v_2}{\partial n}\right) \end{aligned}\right\} \quad \text{(IV,22)}$$

2) avec les multiplicateurs v'_1 et $-u'_1$, puis v_2 et $-u_2$:

$$\left.\begin{aligned} h'(vu'_1 - v'_1 u) &= \lambda_1\left(v'_1 \frac{\partial u'_1}{\partial n} - u' \frac{\partial v'_1}{\partial n}\right) \\ h''(v_2 u - u_2 v) &= \lambda_2\left(v_2 \frac{\partial u_2}{\partial n} - u_2 \frac{\partial v_2}{\partial n}\right). \end{aligned}\right\} \qquad \text{(IV,23)}$$

Compte tenu de (IV,22) et (IV,23) la relation (IV,21) prend la forme :

$$\iint_{'1} \lambda_1 \frac{h_1}{h'}\left(v'_1 \frac{\partial u'_1}{\partial n} - u'_1 \frac{\partial v'_1}{\partial n}\right) dS - \iint_{S2} \lambda_2 \frac{h_2}{h''}\left(v_2 \frac{\partial u_2}{\partial n} - u_2 \frac{\partial v_2}{\partial n}\right) dS = -\omega J_1$$

avec :

$$J_1 = (u^2 + v^2)\Gamma.$$

Comme les fonctions $\frac{h_1}{h''}(M)$ et $\frac{h_2}{h''}(M)$ sont *positives*, on peut, en appliquant une formule classique de la moyenne, écrire l'égalité précédente sous la forme :

$$A'_1 z'_1 - A_2 z_2 = -\omega J_1,$$

A'_1 et A_2 désignant deux coefficients *positifs* convenables.

Nous disposons donc maintenant de $(2n - 1)$ équations :

$$z_k - z'_k = -\omega I_k \qquad (k = 1, 2, \ldots n)$$

et :

$$A'_i z_i - A_{i+1} z_{i+1} = -\omega J_i \qquad (i = 1, 2, \ldots n - 1)$$

dont découle la combinaison linéaire suivante :

$$z - \frac{A_2 A_3 \ldots A_n}{A'_1 A'_2 \ldots A'_{n-1}} z'_n = -\omega\left[I_1 + \sum_{k=2}^{k=n} \frac{A_2 A_3 \ldots A_k}{A'_1 A'_2 \ldots A'_{k-1}} I_k + \sum_{i=1}^{i=n-1} \frac{A_2 A_3 \ldots A_i}{A'_1 A'_2 \ldots A'_{i-1}} J\right].$$

Cette relation est bien de la forme (IV,20) *et la réalité des racines de l'impédance de transfert se trouve donc établie dans ce cas général.*

La température des fluides en contact avec les parois n'est plus uniforme.

Nous nous contenterons d'indiquer ici les conditions dans lesquelles nous avons pu étendre à ce cas la propriété de réalité des racines de l'impédance de transfert.

Les fluides sont supposés être des gaz, dont les variations d'énergie cinétique absorbent une énergie négligeable en regard de leurs variations d'enthalpie. Il s'agit par exemple d'un échangeur thermique (fig. 22).

Les échanges de chaleur longitudinaux (axe du tube) sont négligeables devant les échanges par transmission radiale à travers le tube de l'échangeur.

Dans ces conditions, avec les notations précisées sur la figure 22) :

— L'équation aux dérivées partielles reliant la température $\Theta_c + \theta_c(t)$ du gaz à la température $\Theta_1 + \theta_1(t)$ de la surface S_1 est de la forme :

$$\Lambda_c \frac{\partial(\Theta_c + \theta_c)}{\partial y} + T_c \frac{\partial \theta_c}{\partial t} + (\Theta_c + \theta_c) = (\Theta_1 + \theta_1) \qquad \text{(IV,24)}$$

avec :

$$\Lambda_c = \frac{Q}{S} \frac{c_c d}{4 h_c} \qquad T_c = \frac{\mu_c c_c d}{4 h_c} \qquad \text{(IV,25)}$$

d désigne ici la différence des deux diamètres $d_1 d_2$, définissant la section droite de l'espace annulaire (fig. 22) ; S. la surface de cette section ; μ_c et c_c la masse spécifique moyenne et la chaleur spécifique à pression constante du gaz ; h_c le coefficient de convection forcée (12) (noté α dans l'ouvrage cité en référence), rapporté à la température moyenne du gaz dans la section considérée, d'abscisse y.

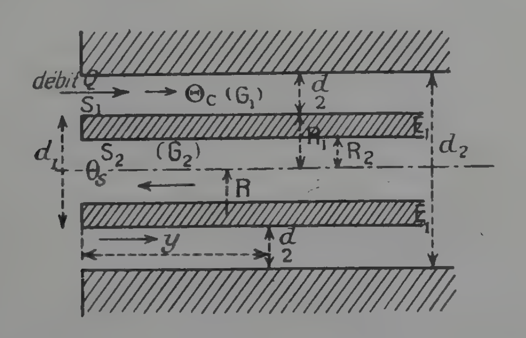


Fig. 22.

— Le nombre de Prandtl étant pratiquement constant et de l'ordre de 0,75 dans le cas des gaz, h_c s'exprime simplement en fonction du nombre de Reynolds $\mathcal{R}$ par l'intermédiaire du nombre $\mathcal{B}$ de Biot-Nusselt (13) qui fait intervenir la conductibilité calorifique λ_c du gaz :

$$\mathcal{B} = \frac{h_c d}{\lambda_c} \sim 0{,}02 \mathcal{R}^{0,8}, \qquad \text{(IV,26)}$$

le tube étant supposé lisse.

Prenons $\mathcal{R} = 20\,000$, $d = 2$ cm. Dans ces conditions :

$$\frac{Q}{S} = \frac{\mathcal{R}\nu}{d} = \frac{20\,000 \times 3.10^{-4}}{2} \sim 3 \text{ g/s.cm}^2,$$

en adoptant pour valeur du coefficient de viscosité ν celle de la viscosité de l'air vers 300° C. A cette température, $\lambda_c = 1,0 . 10^{-4}$ C. G. S., $c_c = 0,25$ C. G. S. et $\mu_c = 0,62 . 10^{-3}$, la pression étant supposée de l'ordre de 1 atmosphère. On trouve alors :

$h_c = 2,8 . 10^{-3}$ cal/cm × °C × sec $\quad \Lambda_c = 130$ cm $\quad T_c = 3 . 10^{-2}$ sec.

— Le rapport λ_c/μ_c étant sensiblement indépendant de la température, h_c ne dépend finalement de la viscosité du gaz que par $\nu^{0,2}$. Comme, d'autre part, la viscosité elle-même varie assez lentement avec la température, nous négligeons la répercussion des variations de température sur h_c.

Application. Echangeur thermique gaz-gaz à contre-courant.

Notations et ordres de grandeur. — Cet exemple est étudié dans le cadre des hypothèses du paragraphe précédent. Les notations et ordres de grandeur sont les mêmes. On précise de plus que :

1° La température Θ_S à régler est la température de sortie du gaz G_2 (fig. 22), que nous supposerons très voisine de $[\Theta_2]_{y=0}$.

2° Le débit Q du gaz chaud G_1 qui circule dans l'espace annulaire extérieur au tube est pris comme grandeur de réglage.

Transmission de la chaleur à travers les face externe et interne du tube. — *A travers la face externe :* Le régime variable que l'on superpose au régime stationnaire initial en modifiant le débit Q du gaz G_1, satisfait aux deux équations :

$$\left.\begin{aligned} \Lambda_{c1}\frac{d\theta_{c1}}{dy} + (1 + T_{c1}p)\theta_{c1} - \theta_1 &= -\frac{d\theta_{c1}}{dy}\frac{d\Lambda_{c1}}{dQ}q(p) \\ \theta_{c1} - \theta_1 &= \frac{\lambda_0}{h_{c1}}\left[\frac{\partial\theta_1}{\partial n}\right] - \frac{\lambda_0}{h_{c1}^2}\frac{dh_{c1}}{dQ}\left[\frac{\partial\theta_1}{\partial n}\right]q(p) \end{aligned}\right\} \qquad \text{(IV,27)}$$

$\mu_0\gamma_0\lambda_0$ désignent les masse et chaleur spécifiques, et le coefficient de conduction du métal constituant la paroi du tube.

Au voisinage de la section $y = 0$, $\frac{\partial\Theta_1}{\partial n}$ est égal à $\frac{h_{c1}}{\lambda_0}(\Theta_{c1} - \Theta_1)_{y=0}$ ou, de façon plus condensée, à $\frac{h_{c1}}{\lambda_0} . \Delta\Theta_0$. Dans les mêmes conditions :

$$\left(\frac{d\Theta_{c1}}{dy}\right)_{y=0} = -\frac{\Delta\Theta_0}{\Lambda_{c1}} .$$

En outre, il résulte des relations (IV,25) et (IV,26) que :

$$\frac{dh_{c1}}{h_{c1}} = 0,8\frac{q}{Q} \qquad \text{et} \qquad \frac{d\Lambda_{c1}}{\Lambda_{c1}} = 0,2\frac{q}{Q} .$$

Transformant, en conséquence, les équations (IV,27), puis éliminant θ_{c1}, nous obtenons la condition cherchée sur S_1, qui s'écrit :

$$\theta_1 + \frac{\lambda_0}{h_c}\frac{\partial \theta_1}{\partial n} = 0{,}8 \,.\, \Delta\Theta_0 \frac{q(p)}{Q} \qquad \text{(IV,28)}$$

A travers la face interne S_2, la transmission de la chaleur est déterminée par les conditions 1°, précisées au paragraphe precédent. Nous aurons sensiblement, en négligeant T_{c2} :

$$\frac{\partial \theta_2}{\partial n} = 0 \qquad \text{(IV,29)}$$

Impédance de transfert. — La transmission radiale de la chaleur étant largement prépondérante, nous pouvons écrire, dans l'épaisseur du tube, en introduisant les fonctions de Bessel modifiées de rang 0 et 1 :

$$\theta(R,p) = AI_0(z) + BK_0(z)$$
$$\frac{\partial \theta}{\partial r} = \frac{z}{R}\left[AI_1(z) + BK_1(z)\right] \qquad \text{avec : } z = \sqrt{\frac{\mu_0\gamma_0}{\lambda_0}}\, pR \text{ (cf. fig. 22)}$$

En déterminant A et B par (IV,28 et 29). on obtient, à un facteur constant près, l'impédance de transfert de l'échangeur :

$$\left.\begin{aligned} C.Z(p) = \frac{z_2}{2}&\left[K_1(z_2)I_0(z_1) - I_1(z_2)K_0(z_1)\right] \\ &+ \frac{2\lambda_0}{R_1 h_{c1}}\left[K_1(z_2)I_1(z_1) - I_1(z_2)K_1(z_1)\right]\frac{z_1}{2}\frac{z_2}{2} \end{aligned}\right\} \text{(IV,30)}$$

D'après la relation (IV,26), $\frac{2\lambda_0}{R_1 h_{c1}}$, rapport que nous désignerons par m, est de l'ordre de $100(d/R_1)(\lambda_0/\lambda_{c1})1/\mathcal{R}^{0,8}$. Avec un tube métallique 1 000 fois plus conducteur que G_1, le facteur m reste supérieur à 20 (si $d/R_1 \geqslant 2$), tant que $\mathcal{R}$ ne dépasse pas 10^5, et le deuxième terme de l'impédance de transfert est prépondérant.

L'épaisseur du tube étant en général une fraction assez faible du rayon externe R_1, nous sommes conduits à développer l'expression (IV,30) en série de Taylor de $\Delta z = -(z_1 - z_2)$. Il est commode de prendre comme paramètres :

$$x = \left(\frac{z}{2}\right)^2 = \frac{\mu_0\gamma_0}{\lambda_0}\frac{R^2}{4}p \qquad \text{et} \qquad \alpha = \frac{x_1 - x_2}{x_1} = \frac{R_1 - R_2}{R_1} \times \frac{R_1 + R_2}{R_1}\,.$$

Le développement cherché se présente alors finalement sous la forme :

$$C.Z(p) = \frac{m}{\alpha}\,.\,\alpha\sqrt{x_1}\ \text{sh}\,(\alpha\sqrt{x_1}) + \ldots$$

Nous trouvons ici un exemple d'impédance dont le terme constant est nul. Nous savons donc que le réglage proportionnel jouera, vis-à-vis de la perturbation « échelon » de la température réglée, un rôle analogue au réglage intégral habituel.

Stabilité du réglage proportionnel. Avantage d'un réglage dérivé annexe. — Le calcul des plus petites racines des parties réelle et imaginaire de l'impédance de transfert n'offre aucune difficulté particulière. On peut ainsi, sachant que seules ces racines interviennent dans la détermination des limites de stabilité du réglage, calculer les taux et périodes critiques. Les résultats numériques sont rassemblés dans le tableau ci-dessous :

CAS DU RÉGLAGE PROPORTIONNEL SEUL.

Limite critique	Période des oscillations
$r_0 g_0 = \frac{3\pi}{4}\left[\operatorname{sh}\frac{3\pi}{4} + \operatorname{ch}\frac{3\pi}{4}\right]\frac{\sqrt{2}}{2}$ $r_0 g_0 = 17$	$T_0 = \frac{8}{9\pi}\frac{\mu_0\gamma_0}{\lambda_0}(R_1^2\alpha^2)$

La période croît sensiblement comme le carré de l'épaisseur du tube.

Lorsque le tube est en acier ordinaire, $\mu_0 = 8$ CGS, $\gamma_0 = 0{,}12$ CGS et $\lambda_0 = 0{,}12$ CGS. En adoptant, d'autre part, les dimensions courantes : $R_1 = 13$ mm, $R_2 = 10$ mm, $\alpha = 0{,}4$, nous trouvons :

$$\boxed{T_0 = 0{,}6 \text{ s}}$$

La valeur de cette période, nettement supérieure aux constantes de temps T_{c1} et T_{c2}, relatives aux gaz G_1 et G_2, justifie bien, *a posteriori*, l'approximation faite en négligeant T_{c2}.

AVEC UN RÉGLAGE DÉRIVÉ « OPTIMUM », les limites critiques correspondantes seraient :

$$r'_0 g'_0 = 32 \qquad \text{et} \qquad T'_0 = 0{,}45 \text{ s.}$$

L'efficacité du réglage proportionnel est pratiquement doublée.

CONCLUSION

Nous avons appliqué la méthode de fusion des racines à divers exemples, en nous proposant de traiter les trois problèmes suivants :

1° *Calcul de la période des oscillations de pompage.*
2° *Calcul de la sensibilité-limite du régulateur.*

3° *Recherche de l'efficacité maximum du régulateur par combinaison des réglages par actions proportionnelle, dérivée et intégrale.*

Dans toutes ces applications, nous avons pu pousser l'étude de ces problèmes jusqu'aux solutions numériques, alors que les expressions mathématiques auxquelles on devait appliquer la méthode de discussion étaient parfois d'aspect assez complexe. C'était, en particulier, le cas des exemples de réglage thermique.

On a vu, dans l'exposé général du chapitre II, comment l'utilisation de la méthode conduit à envisager les courbes représentatives de trois fonctions de ω^2, ω désignant la pulsation des oscillations forcées de la grandeur réglée qui permettent de définir l'impédance de l'installation $Z(j\omega)$.

Deux de ces courbes représentent, l'une, la partie réelle, l'autre, la partie imaginaire de l'impédance $Z(j\omega)$. La troisième est une hyperbole que l'on doit faire intervenir dans le cas du réglage intégral. Or, le plus souvent, on observera que *les deux premières courbes peuvent être assimilées, dans leurs parties utiles, l'une à une parabole, l'autre à une droite*. Cette simplification résulte du fait que *l'oscillation du pompage à la fréquence minimum est, en général, seule à considérer dans les problèmes posés par les réglages industriels*.

La discussion se réduit alors à l'étude de la disposition :

soit des points d'intersection de la parabole, d'une part, et de la droite, d'autre part, avec l'axe des ω^2, lorsque le régulateur ne procède que par actions proportionnelle et dérivée ;

soit des points d'intersection de la parabole avec l'axe des ω^2, *d'une part, et des abscisses des points d'intersection de l'hyperbole et de la droite, d'autre part*, lorsque le régulateur procède en outre par action intégrale.

Il en était ainsi dans l'application aux servomécanismes pneumatiques. Mais on bénéficiait aussi de cette simplification dans le cas du four à creuset (2) et de l'échangeur thermique à contre-courant, bien qu'elle fût moins apparente, parce que nous avons pu faire usage, dans ces exemples particuliers, de tables des valeurs numériques de fonctions classiques, qui nous ont dispensé d'avoir recours au calcul approché.

Dans le cas des réglages thermiques, cette simplification se présente systématiquement, comme nous l'avons démontré, en prouvant la validité générale du principe de la fréquence minimum des oscillations de pompage. La méthode de fusion des racines apparaît bien, pour cette raison, spécialement adaptée à l'étude de cette vaste catégorie de réglages.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

(1) M. A. Adkins. — *The journal of the institution of electrical engineers*, May 1947, II A, 53.
(2) P.-L. Dubois-Violette. — *C. R. Ac. Sc.*, 16 juil. 1951, **233**, 232.
(3) P.-L. Dubois-Violette. — *C. R. Ac. Sc.*, 1er oct. 1951, **233**, 730.
(4) James, Nichols, Phillips. — *Theory of Servomechanisms*, Mc Graw-Hill book Co income 1947, 58.
(5) P. Naslin. — Les systèmes asservis. *Editions Rev. Opt.*, 1951, 29.
(6) G. Nasse. — Le circuit de régulation. *Act. scient. et ind.*, Hermann et Cie, 1949, 30.
(7) N. Obrechkoff. — *Actual. Sc. et ind.*, 891, XVI. Hermann et Cie Ed., 1941, 25.
(8) N. Obrechkoff. — *C. R. Ac. Sc.*, 1938, **206**, 1874.
(9) M. Parodi. — *Applications physiques de la transformation de Laplace*, CNSR Ed., Gauthier-Villars, 1948, 75.
(10) G. Polya. — *Gött. Nachr.*, 1913, **326**, 330.
(11) G. Ribaud. — *Journal de Physique*, 1941, 12.
(12) G. Ribaud et E. Brun. — *Mém. Sc. Phys.*, Gauthier-Villars, 1942, 69.
(13) G. Ribaud et E. Brun. — *Loc. cit.*, 47.
(14) Y. Rocard. — *Dynamique générale des vibrations*, Masson et Cie, 1949, 283.
(15) G. Valiron. — *Théorie des fonctions*, Masson, 1942, 429-430.

Le Gérant : G. Masson.

DÉPÔT LÉGAL : 1954, 3e TRIMESTRE, No D'ORDRE 1907, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
BARNÉOUD FRÈRES ET Cie, IMPRIMEURS (31.0566), LAVAL, No 3007. — 10-1954.

LA « FOCALISATION FORTE » DANS LES ACCÉLÉRATEURS LINÉAIRES D'IONS (1)

Par Michel-Yves BERNARD

SOMMAIRE. — L'accélérateur linéaire haute fréquence présente le grave inconvénient de faire diverger le faisceau de particules qu'il accélère. Dans le cas des électrons, cette divergence est assez faible ; il suffit, en général, de quelques bobines magnétiques pour assurer la stabilité radiale. Il n'en est pas de même pour les particules lourdes, car ces corpuscules sont relativement lents, par rapport à des électrons de même énergie. Ils sont défocalisés à un point tel qu'ils se perdent dans la paroi après un parcours de quelques mètres. Ce fait explique le peu de succès rencontré jusqu'à ce jour par ce modèle d'accélérateur. Ce mémoire étudie l'adaptation à l'accélérateur linéaire d'un nouveau type de lentille, les « lentilles à convergence forte » (2), spécialement adaptées à la focalisation des particules lourdes et rapides.

Il nous faut d'abord obtenir des renseignements précis sur les forces qui sont la cause de cette divergence. Nous rappelons donc succinctement les formules fondamentales d'une théorie simple décrivant le mouvement d'un ion dans l'accélérateur. Cette théorie a fait l'objet d'une publication antérieure (7). Il est alors possible de calculer complètement la trajectoire d'un ion accéléré. Les résultats que nous obtenons montrent que l'ordre de grandeur de la divergence est incompatible avec la réalisation d'un accélérateur de grande longueur, donc de grande énergie.

Nous donnons ensuite le principe des méthodes de focalisation corpusculaire, qui sont, pour la plupart mal adaptées aux particules lourdes et rapides. Par contre, la « convergence forte », nouveau procédé, récemment proposé par Courant, Livingston et Snyder, est particulièrement destiné à ces corpuscules.

Après avoir rappelé le principe de la convergence forte, nous donnons les résultats essentiels sur la répartition des champs dans les lentilles de ce type. Cette étude, théorique et expérimentale porte à la fois sur les lentilles électriques et sur les lentilles magnétiques.

Nous pouvons alors calculer la trajectoire d'une particule soumise à la fois aux champs défocalisants de l'onde accélératrice, et à l'action focalisante des lentilles. Nous établissons ainsi une condition de stabilité laté-

(1) Thèse présentée, le 20 octobre 1953, à la Faculté des Sciences de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques.

(2) Nous traduisons par « convergence forte » un néologisme anglo-saxon qui devient classique « strong focussing ».

...ation périodique bimestrielle.

rale dont nous pouvons tirer les caractéristiques des lentilles qui compensent la divergence. Les valeurs des potentiels d'alimentation des électrodes, dans le cas des lentilles électriques, ou des courants magnétisants, dans le cas des lentilles magnétiques, sont très réalisables, et permettent d'envisager des accélérateurs stabilisés par ce procédé.

On pourra alors bénéficier des avantages considérables de ce modèle d'accélérateur (faible prix de revient, grande facilité pour l'injection et l'extraction du faisceau, pertes par rayonnement quasi inexistantes...).

CHAPITRE PREMIER

DESCRIPTION DU MOUVEMENT LONGITUDINAL DES IONS

Principe de l'accélérateur à résonance.

Structure de l'appareil. — Considérons deux tubes cylindriques, coaxiaux de rayon R, séparés par une coupure de longueur d. Entre les bords de cette coupure, on applique, par un dispositif convenable, une différence de potentiel alternative $\Phi_0 \sin \omega t$.

La fréquence $f = \frac{\omega}{2\pi}$ est inférieure à la fréquence de coupure dans le guide circulaire de rayon R, ce qui exige :

$$f.\mathrm{R} < 87{,}9 \,.\, 10^6.$$

Il n'y a donc pas de propagation d'énergie dans les tubes et le champ HF n'a une valeur importante que dans la coupure et dans son voisinage immédiat. Les particules circuleront au voisinage de l'axe, et suivant une direction sensiblement parallèle à celui-ci ; elles seront ainsi soumises au champ axial, $E_z \sin \omega t$. Nous avons donné, dans une publication antérieure un procédé de calcul de ce champ (4).

Etudions alors le mouvement d'une particule, de masse M et de charge e, qui se déplace à l'intérieur du premier tube avec la vitesse constante $v = \sqrt{\frac{2e\Phi}{\mathrm{M}}}$ [1]. Elle traverse la coupure, subit l'action du champ axial, qui peut être positive ou négative suivant l'instant

[1] Nous étudions les accélérateurs de particules lourdes (protons...) dont l'énergie est de l'ordre de quelques dizaines de MeV. Il est donc superflu d'utiliser la mécanique relativiste. Rappelons que l'énergie d'une particule se mesure par le potentiel Φ qui, appliqué dans un accélérateur statique, lui aurait communiqué la même vitesse.

Sauf spécifications contraires, toutes les grandeurs sont en unités M. K. S. A. rationalisées.

moyen t_0 de la traversée, et ressort avec une énergie Φ' différente. Le gain d'énergie $\Delta\Phi = \Phi' - \Phi$ est, en première approximation, de l'ordre de $\Delta\Phi \approx \Phi_0 \sin \omega t_0$, si l'on admet que le temps de transit à travers la coupure est faible devant la période. Nous poserons $\omega t_0 = \Psi$; comme l'on désire une accélération, il est essentiel que Ψ soit compris entre o et π. Nous verrons ultérieurement des conditions plus restrictives.

Considérons maintenant une particule particulière, qui sera dans la suite, la « particule type » de l'accélérateur. Cette particule a traversé la coupure avec l'angle Ψ_s, de l'ordre de 70° pour fixer les idées. Cette particule a donc subi une accélération.

Plaçons alors une autre coupure, sensiblement identique à la précédente, à une distance telle que la « particule type » la traverse avec le même angle (à $k2\pi$ près). Il faut pour cela que le temps de transit entre les deux coupures soit égal à la période du champ accélérateur. La particule subit une nouvelle accélération.

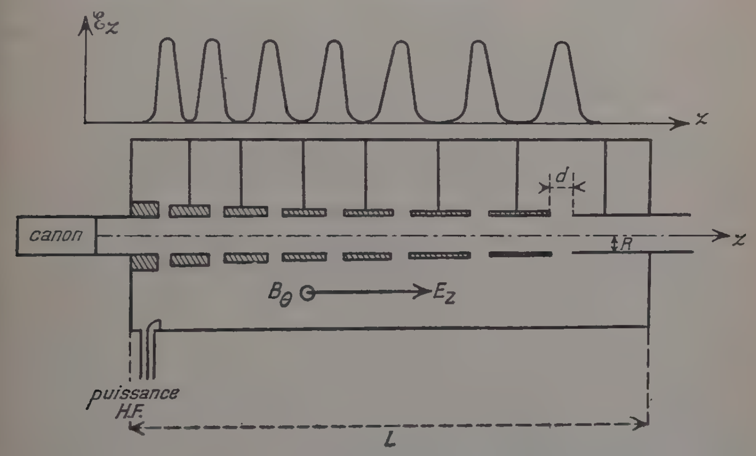


Fig. 1. — Schéma de principe d'un accélérateur linéaire d'ions (Alvarez). Allure de l'amplitude du champ électrique sur l'axe de l'appareil.

Rien n'empêche de placer une troisième, puis une quatrième coupure, à des emplacements convenables pour que l'angle Ψ de cette particule soit toujours Ψ_s. La particule type subira une accélération régulière, d'autant plus importante que l'appareil est plus long.

Considérons enfin un corpuscule qui traverse la coupure avec un léger retard Δt sur la « particule type » ; l'angle Ψ sera plus grande que Ψ_s, puisque $\Psi = \omega(t_0 + \Delta t) = \Psi_s + \omega\Delta t$. Le gain d'énergie, sensiblement égal à $\Phi_0 \sin \Psi$ sera donc plus important puisque Ψ_0 est inférieur à $\pi/2$ et le corpuscule rattrapera le retard. De même un

corpuscule en avance perdra son avance, car il trouvera un champ inférieur lors de la traversée de la coupure.

On observera donc un « groupement » de toutes les particules autour de la particule type. On vérifiera aisément que ce groupement n'est possible que si l'angle Ψ_s est compris entre o et $\pi/2$. C'est la condition de stabilité longitudinale.

Un accélérateur linéaire se composera d'un guide circulaire, chargé par des coupures convenablement espacées. Les particules sont injectées à une extrémité, avec une énergie de Φ_i électron-volt. Une partie d'entre elles, celles dont l'angle est voisin de ψ_s subit une accélération régulière et ressort avec l'énergie moyenne Φ_f, après avoir traversé l'appareil de longueur L.

Caractéristiques de quelques appareils. — Le principe de l'accélérateur linéaire remonte à Wideroe (36) en 1929. Une importante réalisation a été faite, en 1931-1933 par Sloan, Lawrence et Coates (32) (33). La grande réalisation moderne est celle d'Alvarez et de son équipe à Berkeley (1) (11) (30). Un projet est en cours de réalisation en Angleterre, pour l'A. E. R. E. à Harwell, par Walkinshaw (35) et d'autres, aux U. S. A. à Brookhaven, et dans le Minnesota.

Le tableau ci-dessous donne les principales caractéristiques de ces appareils. Ces renseignements nous seront utiles dans la suite pour trouver l'ordre de grandeur des paramètres.

Auteurs	Φ_i	Φ_f	L_m	n	Gain	f	Ions
Wideroe (36).		0,05 MV		2	25 kV par gap	3.10^6	K+, Na+
Coates, Sloan (32). Lawrence (33).	0,01 MV	1,26 MV 2,85 MV	1,14 1,85	30 36	42 kV par gap 79 kV par gap	10^7	Hg+
Alvarez et coll. (1) (11)	4 MV	32 MV	12	46	2,33 MV par mètre	2.10^8	${}^1_1H^+$
Projet anglais (35).	0,5 MV	600 MV			0,8 MV par mètre au début puis 2,3 MV ensuite		${}^1_1H^+$

(n est le nombre de coupures accélératrices).

La figure 1 donne le schéma de l'appareil d'Alvarez. La différence de potentiel entre les bords des coupures est créé par une cavité

résonnante qui entoure le guide. Dans l'accélérateur de Sloan, au contraire, la même source de potentiel alimente toutes les coupures par l'intermédiaire d'une ligne de transmission.

Les réalisations de ce type d'accélérateur sont donc relativement peu nombreuses si on les compare aux réalisations d'accélérateurs magnétiques (cyclotrons et dérivés...). Un grave défaut de l'accélérateur linéaire est la cause du peu de succès de ce dispositif.

On constate en effet que la particule type, et les particules voisines, c'est-à-dire les particules qui sont accélérées, sont soumises à des forces divergentes importantes qui les éloignent de l'axe. Après un certain parcours, les corpuscules se perdent dans les parois de guide (1).

Il faut donc adjoindre à l'accélérateur des montages focalisants qui combattent cette divergence.

Ce mémoire étudie les possibilités d'adaptation à l'accélérateur linéaire d'ions, de nouvelles lentilles spécialement destinées à la focalisation de particules lourdes et rapides, les lentilles « à convergence forte ». Le principe de ces montages a été proposé par Courant, Livingston et Snyder (16) et leur application à l'accélérateur linéaire a été suggérée par Blewett (10).

Difficultés d'une théorie directe. — Si l'on désire compenser les forces latérales défocalisantes, il est essentiel d'avoir à sa disposition une expression précise de ces forces. La théorie la plus immédiate consiste à étudier le mouvement dans une coupure, puis à raccorder les éléments de trajectoires ainsi obtenus. Malheureusement, l'équation du mouvement longitudinal dans une coupure :

$$\text{(1.1)} \qquad M\frac{d^2z}{dt^2} = eE_z(z)\sin\omega t$$

ne s'intègre pas facilement, même en choisissant des modèles simples pour le champ $E_z(z)$. Les tentatives de F. Rabinovitch (27) ne laissent que peu d'espoir d'obtenir une représentation simple de la trajectoire dans une coupure.

Il en est de même pour l'étude du mouvement latéral. On peut obtenir, comme nous l'avons montré dans une publication antérieure (6), une expression approchée de la divergence causée par une coupure, mais les formules obtenues ne constituent qu'une première approximation, qu'il n'est guère possible d'améliorer.

(1) On a récemment tenté de combattre cette divergence, sans adjoindre de lentilles à l'appareil. On peut obtenir un accélérateur stable, latéralement, si l'on est moins exigeant sur la stabilité longitudinale (12) (18) (20).

L'accélérateur à onde progressive.

L'accélérateur linéaire d'électrons. — Depuis une dizaine d'années, on construit des accélérateurs d'électrons qui semblent basés sur un principe tout à fait différent. Un guide circulaire est chargé par des iris de façon que l'onde progressive qui circule dans le guide ait une vitesse lentement variable, soit :

$$E_z = A(z) \sin [\varphi(z) - \omega t]$$

le champ axial d'une telle onde.

Sa vitesse, variable, sera :

$$v = \frac{\omega}{d\varphi/dz}.$$

L'amplitude $A(z)$ est le plus souvent constante, mais on peut facilement imaginer des montages où elle dépendrait de l'abscisse. Comme ces montages présentent un grand intérêt pour l'accélération, nous garderons une amplitude variable, dans nos formules générales.

Considérons une particule, de masse M et de charge e, qui accompagne l'onde dans son mouvement, en restant « calée » à la « phase » φ_s [1]. Son équation horaire est donc :

$$\varphi(z) = \varphi_s + \omega t. \tag{1.2}$$

D'autre part, elle est soumise à la force accélératrice :

$$eA(z) \sin \varphi_s \tag{1.3}$$

de la part du champ. Il est essentiel que cette force crée le mouvement imposé par l'équation (1.2). On en déduit la condition nécessaire de synchronisme à laquelle doit satisfaire l'onde pour être capable d'accélérer des particules :

$$A(z) \sin \varphi_s = -\frac{M}{e} \omega^2 \frac{\varphi''_{z^2}}{(\varphi'_z)^3}. \tag{1.4}$$

Ce procédé très simple n'est malheureusement pas applicable aux accélérateurs d'ions, car ces derniers sont beaucoup trop lents, pour que l'on puisse réaliser aisément avec un guide à iris, une onde qui les accompagne. Il est possible par contre d'obtenir ainsi des électrons de plusieurs centaines de MeV (26). Signalons cependant des efforts récents de Chick et Petrie (14) et de Johnsen (22) qui obtiennent une

[1] On ne confondra pas cette phase φ_s, qui interviendra constamment dans la suite avec l'angle Ψ introduit au début. La théorie complète permet de montrer que ces deux angles sont supplémentaires.

onde très lente à l'aide d'une hélice, comme dans les tubes à propagation d'ondes. Aucune réalisation de ce type n'a encore été entreprise.

Rapports entre l'accélérateur à ondes progressives et l'accélérateur à résonance. — Si l'on examine le champ qui existe réellement dans le guide à iris, on constate qu'il contient, en plus de l'onde accélératrice, ses harmoniques d'espace dont l'action est presque insensible sur le mouvement des électrons. Ce fait se comprend fort bien, car les harmoniques n'obéissent pas à la condition du synchronisme. Ils n'ont pas la même vitesse que les électrons, et leur action sur ces derniers, tantôt positive, tantôt négative, est nulle en moyenne. On peut même faire fonctionner des appareils comportant, outre l'onde progressive, l'onde rétrograde, de façon que le guide contienne une onde stationnaire. De tels montages ont été réalisés par Vastel et Sarazin (34-29).

On voit apparaître le principe d'une théorie simple de l'accélérateur linéaire d'ions. Le champ axial qui existe dans l'appareil d'Alvarez à l'allure indiquée sur la figure 1 ; c'est un champ *stationnaire*. On peut le décomposer en deux ondes progressives de sens inverse. Chacune de ses ondes peut se décomposer à son tour en fondamentale et en harmoniques. L'expérience des accélérateurs d'électrons montre que seule l'onde fondamentale progressive joue un rôle dans l'étude du mouvement. Il suffira donc de prendre une représentation de cette onde fondamentale pour décrire toute la dynamique de l'accélérateur d'ions.

Le problème serait résolu si l'on pouvait transposer aux accélérateurs d'ions les nombreuses théories développées pour les accélérateurs d'électrons, entre autres par Slater (31), Chu (15). Mais, les électrons atteignent très rapidement une vitesse voisine de celle de la lumière. On peut donc décrire leur mouvement avec une bonne précision en prenant une onde de vitesse constante. D'autre part, l'emploi de la mécanique relativiste s'impose.

Pour les ions, au contraire, il suffit de la mécanique newtonnienne, mais la vitesse, toujours faible devant c, varie d'une façon continue d'un bout à l'autre de l'appareil. On ne peut donc décrire le mouvement qu'à l'aide d'une onde progressive de vitesse variable.

Nous avons cherché à établir un modèle simple, permettant de décrire avec une bonne précision, le mouvement dans un accélérateur d'ions. Nous allons donner les formules les plus essentielles de ce modèle ; nous nous limitons aux formules ayant de l'intérêt pour la suite de ce mémoire consacré au mouvement latéral. L'étude complète du mouvement longitudinal a fait l'objet d'une autre publication (7).

Principe du modèle théorique. — Considérons la particule type. Elle entre dans l'appareil avec l'énergie Φ_i, à l'abscisse z_i au temps t_i.

Après avoir traversé la distance L elle ressort au temps $t_i + \Delta t$, avec l'énergie Φ_f. Comme il s'agit de la particule-type, son mouvement sera très régulier.

Nous le *représenterons* par une relation du type :

$$\Phi = Kz^{2\nu}. \tag{1.5}$$

l'exposant ν étant choisi de façon que cette loi représente aussi bien que possible le mouvement réel. Quant au paramètre K il est donné par :

$$K = \left[\Phi_f^{1/2\nu} - \Phi_i^{1/2\nu}\right]^{2\nu} / L^{2\nu} \qquad z_i = \left(\frac{\Phi_i}{K}\right)^{1/2\nu} \tag{1.6}$$

La figure 2 illustre cette définition. On peut d'ailleurs prendre

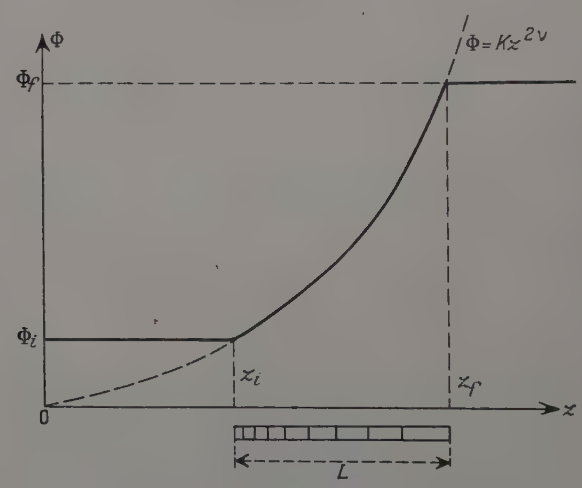


Fig. 2. — Mouvement de la particule type.
principe de la représentation de ce mouvement par une fonction puissance.

plusieurs valeurs de ν pour décrire l'ensemble de l'accélérateur. Comme l'on a :

$$\frac{1}{2} M \left(\frac{dz}{dt}\right)^2 = e\Phi$$

on en déduit l'équation horaire du mouvement de la particule type :

$$\left\{ \begin{aligned} & z^{1-\nu} = z_i^{1-\nu} + \sqrt{\frac{2eK}{M}}\,(t - t_i) && \nu \neq 1 \\ & z = z_i \exp \sqrt{\frac{2eK}{M}}\,(t - t_i) && \nu = 1 \end{aligned} \right. \tag{1.7}$$

On peut en déduire le temps de transit, à travers l'appareil :

$$(1.8)\quad \begin{cases} \Delta t = \dfrac{1}{1-\nu}\sqrt{\dfrac{M}{2e}}\left[\Phi_f^{\frac{1-\nu}{2\nu}} - \Phi_i^{\frac{1-\nu}{2\nu}}\right]\Big/ K^{1/2\nu} & \nu \neq 1 \\ \Delta t = \sqrt{\dfrac{M}{8eK}}\,\mathrm{Log}\ \Phi_f/\Phi_i & \nu = 1 \end{cases}$$

Le temps de transit entre deux coupures est égal à une période du champ H. F. On peut donc calculer la distance l qui sépare deux coupures, et le gain de potentiel à chaque coupure $\Delta\Phi$. On a, dans le cas $\nu \neq 1$:

$$(1.9)\quad \begin{cases} l = \left[z_i^{1-\nu} + (1-\nu)\sqrt{\dfrac{2eK}{M}}(n+1)T\right]^{\frac{1}{1-\nu}} - \left[z_i^{1-\nu} + (1-\nu)\sqrt{\dfrac{2eK}{M}}\,nT\right]^{\frac{1}{1-\nu}} \\ \Delta\Phi = \dfrac{2\nu}{f}\sqrt{\dfrac{2e}{M}}\,K^{1/2\nu}\Phi^{\frac{3\nu-1}{2\nu}} \end{cases}$$

n est le numéro d'ordre de la coupure considérée.

Dans le cas particulier $\nu = 1$ on établira sans difficulté les formules correspondantes.

Dans l'appareil de Sloan, la différence de potentiel appliquée entre les bords des coupures est partout la même. $\Delta\Phi$ est donc indépendant de Φ, ce qui exige $\nu = 1/3$. Cette valeur de ν décrira donc les appareils alimentés comme celui de Sloan.

Il faut maintenant chercher une expression du champ accélérateur. On connaît l'équation horaire du mouvement. Nous pouvons en déduire la phase de l'onde en comparant les équations (1.2) et (1.7). La condition de synchronisme (1.4) nous permet alors de connaître la loi déterminant l'amplitude. On trouve l'onde progressive fondamentale :

$$(1.10)\quad \begin{cases} E_z = 2\nu\dfrac{Kz^{2\nu-1}}{\sin\varphi_s}\sin[\varphi(z) - \omega t] \\ \varphi(z) = \begin{cases} \varphi_s + \omega t_i + \omega\sqrt{\dfrac{M}{2eK}}\dfrac{z^{1-\nu} - z_i^{1-\nu}}{1-\nu} & \nu \neq 1 \\ \varphi_s + \omega t_i + \omega\sqrt{\dfrac{M}{2eK}}\,\mathrm{Log}\ z/z_i & \nu = 1 \end{cases} \end{cases}$$

Cette expression simple du champ accélérateur nous permettra dans la suite de mener à son terme l'étude du mouvement des particules. Remarquons pour terminer que la valeur $\nu = 1/2$ correspond à un champ d'amplitude constante ; c'est le cas de l'accélérateur d'Alvarez

qui sera décrit par cette valeur de ν. On constate en effet (7) que les formules précédentes, appliquées à l'accélérateur d'Alvarez, correspondent bien aux résultats expérimentaux.

Si ν est supérieur à $1/2$ l'amplitude du champ accélérateur augmente avec l'abscisse ; elle diminue au contraire si $\nu < 1/2$ comme c'est le cas dans les accélérateurs de Sloan.

C'est également le cas d'un accélérateur à onde progressive ralentie par une hélice, où l'amplitude du champ décroît à cause des pertes. La dynamique de tels accélérateurs est bien décrite par notre modèle, avec $\nu = 2/7$ (22).

A cette onde progressive, se superposera l'onde rétrograde, ce qui donnera l'onde stationnaire fondamentale :

$$2A(z) \sin \varphi(z) \cos \omega t,$$

puis, en superposant des harmoniques, on arrive à une expression de la forme :

$$\left[\sum_{j=1}^{\infty} a_j A(z) \sin j\varphi(z)\right] \cos \omega t. \tag{1.11}$$

On conçoit qu'un champ accélérateur tel que celui qui existe sur l'axe de l'appareil d'Alvarez puisse se décomposer en une série du type (1.11) analogue à une série de Fourier.

Comme les harmoniques n'apportent qu'une très faible perturbation au mouvement, on pourra décrire les propriétés dynamiques des accélérateurs à résonance par l'action de l'onde progressive fondamentale de leur développement en série du type (1.11).

Le mouvement longitudinal d'une particule quelconque se déplaçant sur l'axe, est donné par l'équation :

$$M \frac{d^2 z}{dt^2} = eE_z.$$

On trouvera à la référence (7) la discussion complète de cette équation. Signalons simplement le résultat essentiel, utile dans la suite de cet exposé.

Il faut que l'appareil assure le groupement longitudinal des particules. Celles-ci doivent se rapprocher peu à peu de la « particule-type ».

La discussion de l'équation (1.12) montre que cela exige φ_s compris entre $\pi/2$ et π. Pratiquement φ_s est de l'ordre de $110°$ à $130°$. Cette condition de stabilité longitudinale joue un grand rôle dans la suite.

Quelques ordres de grandeur. — Avant de commencer l'étude du mouvement latéral, nous allons donner quelques ordres de grandeur pour les principaux paramètres qui interviennent dans ce modèle.

Les valeurs ci-dessous concernent deux accélérateurs :

— D'une part, l'accélérateur d'Alvarez, dont les caractéristiques sont données dans le tableau de la page 4.

D'autre part, un projet d'accélérateur portant des protons de 1 à 4 MeV, après un parcours de 3 m. φ_s est de 115° et la fréquence du champ H. F. est de 10^8 hertz.

On a :

Modèle	ν	K	Δt	Amplitude de E_z [1] au début	Amplitude de E_z [1] à la sortie
Alvarez	1/2	$2{,}3.10^6$	$2{,}25.10^{-7}$	$2{,}45.10^6$	$2{,}45.10^6$
1 à 4 MeV en 3 mètres	1/3	$1{,}75.10^6$	$1{,}36.10^{-7}$	$1{,}72.10^6$	$0{,}85.10^6$
	1/2	10^6	$1{,}41.10^{-7}$	$1{,}11.10^6$	$1{,}11.10^6$
	2/3	$0{,}515.10^6$	$1{,}43.10^{-7}$	$0{,}89.10^6$	$1{,}26.10^6$
	1	$0{,}111.10^6$	$1{,}47.10^{-7}$	$0{,}73.10^6$	$1{,}72.10^6$

(1) Il s'agit de l'amplitude du champ *accélérateur* progressif. L'amplitude du champ réel stationnaire est deux fois plus importante.

Il faut noter que dans le cas de l'accélérateur d'Alvarez, le temps de transit réel est de $2{,}25.10^{-7}$ sec, ce qui constitue une vérification du modèle théorique.

Les fréquences usuellement employées correspondent à des ondes métriques. On pourrait songer à utiliser les ondes centimétriques dont on possède des sources puissantes. On trouvera à la référence [7] quelques détails sur les possibilités d'emploi des ondes centimétriques à l'accélération des ions lourds.

CHAPITRE II

MOUVEMENT LATÉRAL D'UNE PARTICULE ACCÉLÉRÉE. DÉFOCALISATION

Importance des forces latérales.

Expressions des champs latéraux. — La particule accélérée ne se déplacera sur l'axe qu'exceptionnellement. Le plus souvent elle se déplacera suivant une direction sensiblement parallèle à celui-ci, et de ce fait subira l'action des champs E_r et B_θ qui étaient nuls sur l'axe. Nous allons chercher une expression approchée des champ E_r

et B_θ créés par l'onde accélératrice fondamentale ; il est évident en effet que ce sont les seuls champs qui soient susceptibles de donner une action sensible sur la particule accélérée ; les autres auront une action moyenne nulle.

Nous allons supposer que les particules restent sensiblement au voisinage de l'axe, ce qui nous permettra de négliger les puissances de r et de r' supérieures à l'unité. C'est l'approximation bien connue de l'optique géométrique, qui conduit à des résultats tout à fait conformes aux expériences.

Le champ longitudinal est donné par l'expression (1.10). On obtiendra l'autre composante du champ électrique, en écrivant le théorème de Gauss pour un petit cylindre, de longueur dz axé sur Oz. On a :

$$(2.1)\quad \left\{ \begin{aligned} & E_r = -\frac{r\nu K}{\sin \varphi_s} \\ & \left\{ (2\nu - 1) z^{2\nu-2} \sin[\varphi(z) - \omega t] + \omega \sqrt{\frac{M}{2eK}}\, z^{\nu-1} \cos[\varphi(z) - \omega t] \right\} \end{aligned} \right.$$

On calculera ensuite la composante B_θ à laquelle se réduit l'induction magnétique, en exprimant le théorème d'Ampère pour un petit cercle d'axe Oz, et de rayon r. On a :

$$(2.2)\qquad B_\theta = -\frac{r\nu K}{\sin \varphi_s} \frac{\omega}{c^2} z^{2\nu-1} \sin[\varphi(z) - \omega t].$$

Ces champs se présentent sous la forme d'ondes progressives qui accompagnent la particule tout au long de l'appareil.

Equation différentielle du mouvement. — Le mouvement d'une particule chargée dans un champ électromagnétique est donné par la solution de l'équation différentielle :

$$M \frac{d\vec{v}}{dt} = e[\vec{E} + \vec{v} \wedge \vec{B}].$$

Dans la suite, nous adjoindrons à l'accélérateur des montages focalisants qui ne jouissent pas de la symétrie de révolution. Il est donc préférable de projeter cette équation sur des axes rectangulaires Oxyz. On trouve :

$$\begin{aligned} M x''_{t^2} &= e[E_r - z' B_\theta] \frac{x}{r} \\ M y''_{t^2} &= e[E_r - z' B_\theta] \frac{y}{r} \qquad\qquad r = \sqrt{x^2 + y^2} \\ M z''_{t^2} &= e E_z \end{aligned}$$

en nous limitant à l'approximation du premier ordre qui nous conduit à négliger des produits tels que $r \cdot r'_t$. La troisième équation est identique à celle qui donne le mouvement longitudinal sur l'axe.

Le mouvement longitudinal est donc le même sur l'axe et au voisinage. Les deux autres équations deviennent, lorsque l'on remplace les champs E_r et B_θ par leur valeur (2.1) et (2.2) :

$$(2.3) \quad \left\{ \begin{array}{l} \left\{ \begin{array}{c} x''_{t^2} \\ y''_{t^2} \end{array} \right\} = - \left\{ \begin{array}{c} x \\ y \end{array} \right\} \Big\{ (2\nu - 1) z^{2\nu-2} \sin [\varphi(z) - \omega t] \\ \qquad + z^{\nu-1} \left[\omega \sqrt{\frac{M}{2eK}} - \frac{\omega}{c^2} z'_t z^\nu \right] \cos [\varphi(z) - \omega t] \Big\} \end{array} \right.$$

$x(t)$ et $y(t)$ sont donc données par la même équation. Dans la suite les dispositifs focalisants que nous utiliserons feront disparaître cette symétrie.

Forces latérales agissants sur la particule de phase constante. — Nous allons étudier en détail le mouvement de la particule-type ; comme la loi qui décrit son mouvement longitudinal (1.7) est simple, nous pouvons mener à son terme l'étude théorique du mouvement latéral. Il est évident, d'autre part, que les particules accélérées oscilleront autour de la particule-type. La connaissance de la trajectoire de cette dernière est donc essentielle.

Les équations se simplifient considérablement car la fonction $\varphi(z) - \omega t$ reste égale à la constante φ_s. L'équation (2.3) peut s'écrire :

$$\left\{ \begin{array}{c} x''_{t^2} \\ y''_{t^2} \end{array} \right\} = \frac{e}{M} k(z) \left\{ \begin{array}{c} x \\ y \end{array} \right\}$$

en faisant apparaître le gradient de la force latérale qui agit sur la particule :

$$(2.4) \qquad k(z) = - \nu K \left\{ (2\nu - 1) z^{2\nu-2} + z^{\nu-1} \omega \operatorname{ctg} \varphi_s \left[\sqrt{\frac{M}{2eK}} - \frac{z'_t z^\nu}{c^2} \right] \right\}$$

$k(z)$ a les dimensions d'un gradient de champ électrique. Il s'exprimera donc en volt/m/m.

Cette expression se simplifie, car la vitesse longitudinale de la particule est connue (1.7). On obtient alors l'expression définitive du gradient, en utilisant l'énergie de la particule-type comme variable indépendante :

$$(2.5) \quad k(z) = - \nu (2\nu - 1) K^{1/\nu} \Phi^{\frac{\nu-1}{\nu}} - \nu . \operatorname{ctg} \varphi_s . \omega \left(1 - \frac{v^2}{c^2} \right) \sqrt{\frac{MK^{1/\nu}}{2e}} \Phi^{\frac{\nu-1}{2\nu}}$$

Cette expression est également valable dans le cas de $\nu = 1$ bien que les expressions des champs soient légèrement différentes.

Un accélérateur construit de façon à ce que le champ accélérateur soit décrit par le modèle $\Phi = Kz^{2\nu}$ avec $\nu = 1$ correspondra à un gradient défocalisant constant tout le long de l'axe.

Ce gradient se compose de deux termes que nous allons étudier.

Le premier terme :

$$k_1(z) = -\nu(2\nu - 1)K^{1/\nu}\Phi^{\frac{\nu-1}{\nu}} \tag{2.6}$$

provient de la variation de l'amplitude du champ accélérateur avec l'abscisse. Ce terme est nul dans les appareils du type d'Alvarez où le champ a une amplitude constante $\nu = 1/2$. Il est positif si cette amplitude décroît (par exemple dans l'appareil de Sloan, $\nu = 1/3$) et négatif si l'amplitude du champ augmente $\nu > 1/2$. Or un gradient négatif correspond à une force focalisante, qui ramène la particule vers l'axe. On retrouve ici l'influence bénéfique d'un champ d'amplitude croissante. Ce champ possède déjà l'avantage de donner un groupement plus énergique des particules autour de la particule-type (7).

Le second terme du gradient se simplifie considérablement dans les accélérateurs d'ions. En effet, l'emploi de la mécanique newtonienne est tout à fait admissible, ce qui revient à dire que le binôme relativiste $1-(v/c)^2$ peut être confondu avec l'unité. On obtient alors :

$$k_2(z) = -\nu\omega \operatorname{ctg} \varphi_s \sqrt{\frac{MK^{1/\nu}}{2e}}\,\Phi^{\frac{\nu-1}{2\nu}}. \tag{2.7}$$

Dans les accélérateurs d'électrons, au contraire, la vitesse est toujours voisine de c, et le binôme relativiste est très faible.

Le second terme du gradient est donc très faible, tandis que le premier est nul, car le champ accélérateur a une amplitude constante. La défocalisation est donc faible et le problème de la stabilité latérale n'est pas aussi crucial dans les accélérateurs d'électrons que dans les accélérateurs d'ions [1].

Examinons rapidement la formule (2.7). La condition de stabilité longitudinale, essentielle pour créer le groupement, exige que $\operatorname{ctg} \varphi_s$ soit négatif (cf. 1.2.3). De ce fait $k_2(z)$ est toujours positif, et engendre une défocalisation. On peut espérer compenser $k_2(z)$ positif par le choix d'une valeur de ν supérieure à $1/2$ qui rende $k_1(z)$ négatif et supérieur à $k_2(z)$ en valeur absolue. Malheureusement les valeurs usuelles des paramètres ne permettent pas de réaliser cette condition.

Quelques ordres de grandeurs. — Afin de préciser les ordres de grandeurs de ces termes, nous avons rassemblé dans le tableau ci-après un certains nombre de valeurs numériques relatives à l'appareil d'Alvarez ou à l'accélérateur déjà pris pour exemple. On trouvera dans ce tableau les valeurs initiales et finales des gradients défocalisants.

[1] On a cependant adapté une lentille à convergence forte à l'accélérateur d'électrons de Stanford (25) pour améliorer la finesse du faisceau.

Même dans le cas très favorable $\nu = 1$, k_1 ne dépasse pas 2 p. 100 de la valeur de k_2. L'effet du premier terme est très faible, et dans la suite, nous confondrons k et k_2.

On constate d'autre part que le gradient décroît rapidement lorsque l'énergie de la particule croît. C'est au début de l'appareil que le problème de la focalisation sera le plus difficile à résoudre. On comprend l'intérêt des injections à haute énergie (4 MeV à Berkeley). Malheureusement une telle solution est fort coûteuse.

Modèle	ν	Début		Fin	
		$k_1(z_i)$	$k_2(z_i)$	$k_1(z_f)$	$k_2(z_f)$
1 à 4 MeV en 3 mètres	1/3	$+ 5,5.10^4$	$1,6.10^7$	$3,7.10^4$	4.10^6
	1/2	0	$1,1\ 10^7$	0	$5,2.10^6$
	2/3	$- 8.10^4$	$8,5.10^6$	$- 4.10^4$	6.10^6
	1	$- 11,2.10^4$	7.10^6	$- 11,2.10^4$	7.10^6
Alvarez . .	1/2	0	$1,8\ 10^7$	0	$6,4.10^6$

Enfin, le terme principal $k_2(z)$ décroît lorsque ν augmente, à l'entrée de l'appareil. La loi inverse se vérifie à la sortie. Il y aura donc intérêt à prendre au début une section accélératrice décrite par une loi correspondant à ν voisin de 1. Puis, ensuite, on reviendra à $\nu = 1/2$.

Détermination de la trajectoire de la particule-type.

Equation différentielle de la particule-type. — Nous considérons la particule-type, dont le mouvement longitudinal est donné par l'équation (1.7). Nous éliminons ce temps entre cette équation et l'équation différentielle donnant x (2.3). On obtient par ce procédé l'équation des trajectoires. On trouve :

$$\frac{d^2x}{dz^2} + \frac{\nu}{z}\frac{dx}{dz} + x\left[\frac{\nu.\omega.\mathrm{ctg}\,\varphi_s}{2z^{\nu+1}}\sqrt{\frac{M}{2eK}} + \frac{\nu(2\nu-1)}{2z^2}\right] = 0. \tag{2.8}$$

Cette équation se ramène à une équation de Bessel par des transformations analytiques simples. Les tables de Jahnke et Emde (21) indiquent que l'équation :

$$\frac{d^2u}{dv^2} + \frac{1-2\alpha}{v}\frac{du}{dv} + u\left[\frac{\beta^2\gamma^2}{v^{2-2\gamma}} + \frac{\alpha^2 - p^2\gamma^2}{v^2}\right] = 0 \tag{2.9}$$

a pour solution :

$$u = Av^\alpha J_p[\beta v^\gamma] + Bv^\alpha J_{-p}[\beta v^\gamma].$$

Posons donc :

$$\alpha = \gamma = \frac{1-\nu}{2} \qquad p = \sqrt{1 - \frac{2\nu(2\nu-1)}{(1-\nu)^2}} \qquad \beta^2 = \frac{2\nu\omega \operatorname{ctg} \varphi_s}{(1-\nu)^2}\sqrt{\frac{M}{2eK}}\,.$$

L'équation des trajectoires se ramène à la forme canonique (2.9) et la trajectoire est représentée par :

$$x = z^{\frac{1-\nu}{2}}\left[AI_p\left(\beta' z^{\frac{1-\nu}{2}}\right) + BI_{-p}\left(\beta' z^{\frac{1-\nu}{2}}\right)\right] \tag{2.10}$$

avec :

$$\beta' = j\beta = \frac{1}{1-\nu}\sqrt{-2\nu\omega \operatorname{ctg} \varphi_s \sqrt{\frac{M}{2eK}}} \tag{2.11}$$

β' est réel, puisque ctg φ_s est négatif. Nous remplacerons les fonctions de Bessel par leurs développements asymptotiques, ce qui nous conduit à :

$$x = z^{\frac{1-\nu}{4}}\left[A \exp \beta' z^{\frac{1-\nu}{2}} + B \exp \beta' z^{\frac{1-\nu}{2}}\right].$$

L'influence de ν est visible. Il est évident que la défocalisation sera d'autant plus faible que l'argument des exponentielles croîtra moins vite, donc que $1-\nu$ sera plus petit.

Dans le cas particulier, $\nu = 1$ on obtient d'ailleurs des expressions un peu différentes. L'équation des trajectoires est une équation d'Euler :

$$z^2 \frac{d^2x}{dz^2} + z\frac{dx}{dz} + x\left[\frac{1}{2} + \frac{\omega}{2}\sqrt{\frac{M}{2eK}} \operatorname{ctg} \varphi_s\right] = 0 \tag{2.12}$$

et la trajectoire est représentée par une fonction puissance, qui, comme on le sait croît plus lentement qu'une fonction exponentielle.

Ordre de grandeur de la divergence. — Nous supposons que l'on injecte dans l'appareil un faisceau de particules sensiblement parallèle de diamètre d_0. Les formules précédentes permettent de se faire une idée du diamètre du faisceau à la sortie d et de son ouverture angulaire. On obtient :

$$\tag{2.13} \left\{ \begin{aligned} \frac{d}{d_0} &= \rho^{\frac{1-\nu}{8\nu}}\left[\operatorname{ch} \gamma - \frac{1}{2\beta'}\left[\frac{K}{\Phi_i}\right]^{\frac{1-\nu}{4\nu}} \operatorname{sh} \gamma\right] \\ \frac{\alpha}{d_0} &= \frac{1-\nu}{4}\left(\frac{K}{\Phi_i}\right)^{\frac{1}{2\nu}}\left\{\left[\rho^{-\frac{3+\nu}{8\nu}} - \rho^{-\frac{3\nu+1}{8\nu}}\right] \operatorname{ch} \gamma\right. \\ &\quad \left. + \left[2\beta'\left(\frac{\Phi_i}{K}\right)^{\frac{1-\nu}{4\nu}} \rho^{-\frac{3\nu+1}{8\nu}} - \frac{1}{2\beta'}\left(\frac{K}{\Phi_i}\right)^{\frac{1-\nu}{4\nu}} \rho^{-\frac{3+\nu}{8\nu}}\right] \operatorname{sh} \gamma\right. \end{aligned} \right.$$

avec :

$$\rho = \frac{\Phi_f}{\Phi_i} \qquad \gamma = \beta' K^{\frac{\nu-1}{4\nu}} \left[\Phi_f^{\frac{1-\nu}{4\nu}} - \Phi_i^{\frac{1-\nu}{4\nu}} \right].$$

Si ν est égal à 1, on a des formules légèrement différentes, que l'on peut déduire de l'équation (2.12).

Ces formules sont trop compliquées pour que l'on puisse envisager une discussion complète. Remarquons simplement que ρ, rapport des énergies de sortie et d'injection joue un rôle considérable. Toutes choses égales par ailleurs il sera plus aisé d'assurer la stabilité dans l'appareil d'Alvarez ($\rho = 8$) que dans un petit accélérateur démarrant à 100 kV et portant les ions à 1 MeV ($\rho = 10$).

A titre d'exemple, considérons l'accélérateur à protons allant de 1 à 4 MeV. On trouve, pour l'appareil à champ d'amplitude contante :

$$\frac{d}{d_0} \simeq 26 \qquad \frac{\alpha}{d_0} \simeq 21 \text{ radian/mètre.}$$

Ainsi pour un faisceau de 1 mm de diamètre à l'injection, il ressort avec un diamètre de 2,6 cm et une ouverture de $2{,}1 \cdot 10^{-2}$ radian. Cette divergence est encore tolérable, mais il s'agit d'un accélérateur court; d'autre part un faisceau de 1 mm de diamètre sera difficile à obtenir.

Il est donc essentiel, maintenant que nous avons à notre disposition des expressions simples et précises des forces défocalisantes, de chercher à adapter à l'accélérateur des montages focalisants, qui compenseront l'effet nuisible des champs électriques latéraux.

CHAPITRE III

DIVERS TYPES DE MONTAGES FOCALISANTS

Emploi d'une lentille magnétique.

La méthode la plus simple qui permette de compenser la divergence créée par le champ H. F. consiste à immerger tout l'appareil dans une lentille magnétique constituée, par un solénoïde de nI ampère/tour/mètre, enroulé autour de la cavité. Ce solénoïde crée au voisinage de l'axe une induction uniforme donnée par :

$$(3.1) \qquad B = \mu_0 n I \qquad \mu_0 = 1{,}256 \cdot 10^{-6}.$$

C'est le procédé de focalisation utilisé dans les accélérateurs linéaires d'électrons. Les équations du mouvement d'un corpuscule chargé dans un champ magnétique uniforme sont classiques. Dans

le cas de l'approximation du premier ordre, on constate que le mouvement longitudinal n'est pas modifié, tandis que le mouvement latéral est décrit par les deux équations [1] :

$$(3.2) \qquad \frac{d\theta}{dt} = \frac{eB}{2M} \qquad \frac{d^2r}{dt^2} = -\frac{e^2B^2}{4M^2}r.$$

L'introduction d'une lentille magnétique revient donc à créer le long de l'axe, un gradient de force négatif, donc focalisant.

La stabilité latérale sera réalisée lorsque les deux gradients seront égaux. Il est même souhaitable que le gradient focalisant soit plus élevé, car il ne faut pas oublier les autres causes de divergence

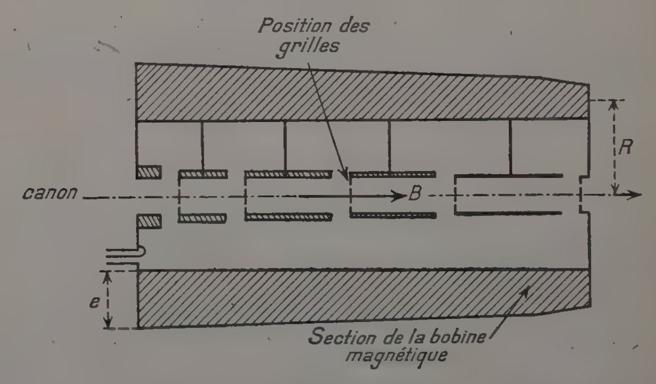


Fig. 3. — Schéma de principe de deux montages focalisants appliqués à l'accélérateur linéaire.

a) Emploi d'une lentille magnétique entourant la cavité accélératrice.
b) Emploi de grilles fermant l'extrémité aval de chaque coupure accélératrice.

(scattering des corpuscules contre les molécules du gaz résiduel, répulsion due à la charge d'espace...).

On obtient ainsi le nombre d'ampère-tour minimum pour assurer la stabilité latérale :

$$(3.3) \qquad \frac{e(\mu_0 n I)^2}{4M} \simeq k_2(z) = \nu\omega \operatorname{ctg} \varphi_s \sqrt{\frac{M}{2e} K^{1/\nu} \Phi}^{\frac{\nu-1}{2\nu}}.$$

Prenons comme exemple l'accélérateur portant des protons de 1 à

(1) En toute rigueur, il faudrait tenir compte de la constante d'intégration qui s'introduit dans l'intégrale première. Mais comme le faisceau est issu d'une source située sur l'axe, cette constante d'intégration est nulle. Pour plus de détails, on se reportera à un article de P. Grivet (19).

4 MeV. Nous trouvons, après quelques calculs, une distribution d'ampère-tour donnée par la loi :

$$(3.4) \qquad nI = 1,44 \cdot 10^7 \Phi^{-1/4} = 4,55 \cdot 10^5 z^{-1/4}$$

dans le cas le plus aisément réalisable ($\nu = 1/2$). La figure 3 indique une réalisation possible de ce solénoïde. Nous admettons une densité de courant de 3 ampère/mm², ce qui nous fixe la section du bobinage. Son épaisseur passe de 15 cm au début à 11 cm à la fin.

Le rayon moyen de la cavité autour de laquelle est fait le bobinage est de 60 cm environ. Finalement on obtient la puissance dépensée par effet joule pour maintenir ce champ. On trouve, dans des bobines en cuivre :

$$P \simeq 200 \text{ kW}.$$

Cette quantité est beaucoup trop élevée, pour être réalisable. Il est indispensable de chercher une solution moins coûteuse, tant comme installation que comme fonctionnement.

Emploi de lentilles électriques.

On ne peut songer à utiliser des lentilles électroniques classiques telles que les lentilles à trois électrodes, pour assurer la stabilité latérale. En effet la convergence d'une lentille électrique est due essentiellement à un effet différentiel s'exerçant sur la vitesse des particules comme Cartan l'a montré en 1937 (13) et comme il est expliqué en détail dans la référence (19). Comme nous avons affaire à des corpuscules dont l'énergie est de l'ordre du MeV, on conçoit que l'effet différentiel soit inexistant, la vitesse restant pratiquement constante au cours de la traversée de la lentille.

Il faut chercher des lentilles électriques qui ne souffrent pas de ce défaut. Ces montages ont été proposés par Cartan (13) et par Knoll et Weichart (23). Nous les avons étudiés en détail, à l'aide d'un modèle théorique précis, dans une publication antérieure (5). Ils consistent à remplacer une des électrodes de la lentille par une membrane métallique mince, traversée par les particules, ou encore par une grille à mailles fines. La figure 3 donne le principe du montage.

Ces montages focalisants ont été appliqués dans l'accélérateur de Berkeley. On trouvera des détails sur leur fonctionnement dans une note de Serber (30) et dans des articles de Gabor (17) et Bell (3).

L'extrémité aval de chaque coupure est fermée par une grille à mailles fines, en tungstène. La présence de ces grilles entraîne une absorption non négligeable (de l'ordre de 50 p. 100).

On peut montrer le rôle focalisant des lentilles à grilles associées à l'accélérateur, en utilisant une méthode directe, qui revient à déter-

miner la convergence d'une lentille isolée puis la forme de la trajectoire dans une succession de lentilles.

Nous avons donné, dans une publication antérieure (6) un procédé de calcul permettant d'évaluer la convergence d'une lentille H. F. L'application de cette méthode a une lentille H. F. à grille donne une convergence égale à :

$$c = \frac{K}{\Phi}\left[2 - \frac{\pi}{2}\,\mathrm{ctg}\ \varphi_s\right] \tag{3.5}$$

dans le cas d'un champ accélérateur d'amplitude constante. Les valeurs usuelles des paramètres montrent que la convergence ainsi obtenue est positive, et la trajectoire est oscillante, d'amplitude lentement croissante.

On peut aussi étudier le rôle stabilisateur des lentilles à grilles avec le modèle mathématique qui nous a servi à décrire l'accélérateur.

En effet, les grilles portent une certaine charge, induite par les champs H. F. de l'appareil. On a donc, sur l'axe de l'appareil une charge d'espace *stationnaire*, de la forme :

$$\rho(z) = R(z)\sin\omega t. \tag{3.6}$$

Cette charge est concentrée sur chaque grille.

Nous pouvons la décomposer en *ondes progressive et rétrograde*, comme nous l'avons fait pour le champ à la page 642 (24).

Au point de vue dynamique, tout se passe comme si les ions étaient accompagnés dans leur mouvement par une charge d'espace progressive, se déplaçant avec eux. Dans ce cas, le calcul de la page 11 n'est plus valable. Il faut maintenant tenir compte des charges intérieures au petit cylindre, pour calculer le champ E_r. On a donc une expression différente du champ radial, et l'on constate que sous l'action de ce dernier, la particule reste au voisinage de l'axe. Nous ne développerons pas ici ces calculs.

Outre la diffusion dans le cas des membranes et l'absorption des particules dans le cas des grilles l'emploi des lentilles à grilles entraînent de nombreuses difficultés. En particulier, la présence de champs électriques intenses engendre des claquages qui abrègent considérablement la vie moyenne des grilles.

Il est donc souhaitable de chercher d'autres montages stabilisateurs.

Emploi des lentilles à convergence forte.

La version électrique. — Examinons le fonctionnement d'une lentille classique, telle qu'une lentille à trois électrodes. On constate que la différence de potentiel dont on dispose pour créer la focalisa-

tion est appliquée entre deux électrodes *perpendiculaires* à la marche du faisceau.

On crée donc un champ accélérateur E_z. Ce n'est que grâce à la variation de ce dernier qu'il apparaît un champ focalisant E_r ; la différence de potentiel est donc fort mal employée.

Il est tout indiqué, au contraire, d'appliquer la différence de potentiel entre deux électrodes *parallèles* à la direction du faisceau. On crée ainsi directement un champ focalisant, sans pour cela créer un champ E susceptible de modifier le mouvement longitudinal des particules.

On arrive ainsi au montage proposé par Courant, Livingston et Snyder (16). Les électrodes sont des morceaux de cylindres dont les

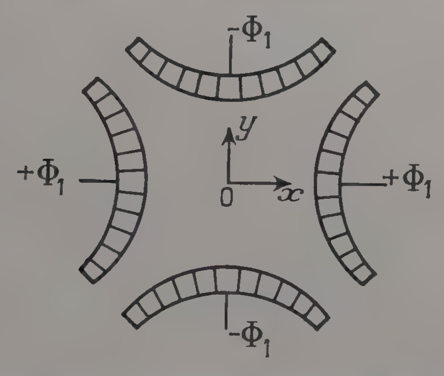


Fig. 4. — Section droite d'une lentille à convergence forte électrique.

génératrices sont parallèles à Oz, direction du faisceau. La figure 4 donne l'allure de la section droite de ce cylindre.

Les électrodes 1 et 1′ sont portées au potentiel $+ \Phi_1$, par rapport à la masse tandis que les électrodes 2 et 2′ sont au potentiel $- \Phi_1$. Le montage est symétrique par rapport aux plans xOz et yOz.

Considérons une particule positive entrant dans le montage au point de coordonnées x,O. Repoussée par l'électrode 1, et ne subissant par raison de symétrie, aucune action des électrodes 2 et 2′ cette particule va se rapprocher de l'axe.

Au contraire, une particule entrant au point de coordonnées O,y s'écartera de l'axe.

Nous voyons apparaître la caractéristique essentielle de ces montages à forte convergence : les particules divergent suivant un des axes du montage, tandis qu'elles convergent suivant l'autre axe. Il est donc essentiel, puisque l'on désire focaliser dans tous les azimuths, de placer, à la suite de ce premier bloc d'électrodes, un

second, de même longueur l, mais dans lequel les potentiels auront changé de signe.

Les deux blocs seront séparés par une coupure de largeur e. Il est essentiel que e soit aussi faible que possible, sinon les particules qui sortent en divergeant de la première moitié de la lentille s'écarteront trop de l'axe avant de subir l'action focalisante de l'autre moitié. L'ouverture utile de la lentille diminue si e augmente.

Ces montages à forte convergence sont donc soumis au même handicap que les lentilles classiques : une moitié est convergente, l'autre est divergente. La focalisation résulte encore d'un effet différentiel. Mais, ici, on peut augmenter *ad libitum* la longueur l des électrodes, de façon à ce que les particules restent soumises assez longtemps au champ pour prendre la convergence voulue. Avec les lentilles classiques, au contraire, il n'était pas possible d'augmenter la longueur, sans corrélativement, diminuer le champ, et par suite la convergence.

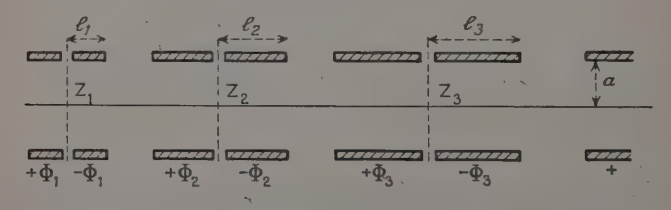


Fig. 5. — Allure générale d'un système stabilisateur à convergence forte.

Un système focalisant à convergence forte sera donc constitué par une succession de lentilles telle que celle qui vient d'être décrite. La figure 5 donne une coupe de ce système. On pourra jouer sur les éléments géométriques (longueur des électrodes, longueur des intervalles, position moyenne des lentilles, forme des électrodes...) ou sur les potentiels d'alimentation, de façon à obtenir la convergence voulue.

La version magnétique. — Prenons un électro-aimant dont la section droite a l'allure indiquée sur la figure 6. Les bobines magnétisantes, parcourues par des courants dont le sens est indiqué sur la figure, font naître des pôles nord et sud alternés.

L'action d'un tel montage sur une particule électrisée est analogue à celle de la lentille électrique que nous venons de signaler. Mais les axes principaux ont maintenant tourné de 45°.

Considérons en effet une particule entrant dans le montage en un point situé sur la première bissectrice des axes, et se dirigeant vers l'avant du tableau. L'examen de la figure montre que le champ magnétique incurve sa trajectoire vers l'axe ; la particule converge.

Au contraire, une particule entrant en un point de la seconde bissectrice va diverger. Nous retrouvons donc le mécanisme de la forte convergence.

Cet examen qualitatif nous fait prévoir l'intérêt qu'il y aura, lors de l'étude du mouvement, à prendre pour axes de références les bis-

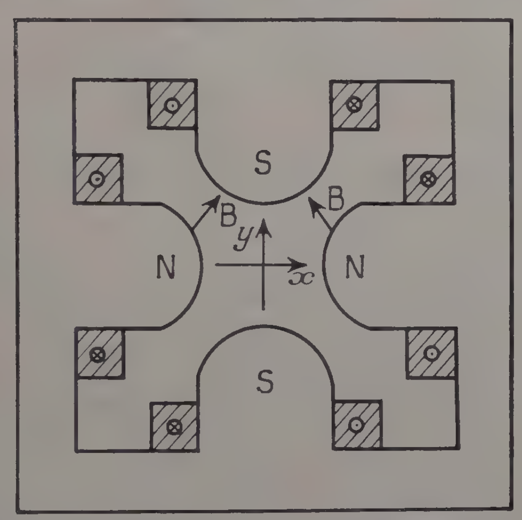


Fig. 6. — Section droite d'une lentille à convergence forte magnétique (Courant-Livingston-Snyder).

sectrices des axes Ox et Oy. Nous constaterons en effet que les équations du mouvement des particules sont identiques à celles qui correspondent au cas de la lentille électrique.

Le système focalisant sera analogue à celui de la figure 5. Chaque lentille est maintenant caractérisée par le nombre d'ampère-tours Ni, que l'on rencontre entre un pôle nord et un pôle sud consécutifs. La réalisation pratique d'un tel montage semble soulever des problèmes techniques plus complexes que la réalisation d'un montage électrique. Il faudra en effet prévoir les connexions électriques entre les diverses lentilles, et l'évacuation de la chaleur produite par effet Joule...

Le problème serait totalement différent si l'on pouvait utiliser des aimants permanents. Ceux-ci auraient la même forme que les noyaux des électro-aimants, avec des enroulements magnétisants identiques. Mais ceux-ci ne seraient parcourus par des courants que pendant les magnétisations périodiques, pendant lesquelles, l'appareil ne fonctionnant pas, tous les procédés usuels de refroidissement sont utilisables. Malheureusement les aimants permanents ne permettent pas d'obtenir des champs aussi intenses que les électro-aimants.

Nous reviendrons ultérieurement sur la possibilité d'utiliser des aimants permanents. Leur emploi apporterait la solution efficace au problème de la stabilité latérale dans les accélérateurs linéaires d'ions.

CHAPITRE IV

RÉPARTITION DES CHAMPS DANS LES LENTILLES A CONVERGENCE FORTE

Allure générale des champs paraxiaux.

Nous déterminerons les champs à partir des potentiels scalaires, électriques Φ, ou magnétiques Ψ. Dans le vide, ces potentiels obéissent à la même équation locale :

$$\nabla^2\Phi = \nabla^2\Psi = 0. \tag{4.1}$$

Nous raisonnerons le plus souvent sur Φ. On rappelle que, dans le vide :

$$\vec{E}_{\text{volt/m}} = -\operatorname{grad} \Phi_{\text{volt}}; \qquad \vec{B}_{\text{weber/m}^2} = -1{,}25.10^{-6} \operatorname{grad} \Psi.$$

Développement limité du potentiel au voisinage de l'axe. Simplifications apportées par la symétrie. — Le mouvement des particules les laisse toujours au voisinage de l'axe. Il est donc indiqué de chercher la valeur de $\Phi(x, y, z)$ pour les faibles valeurs de x et de y.

Nous allons faire un développement limité de la fonction $\Phi(x, y, z)$ qui représente le potentiel électrique, suivant les puissances de x et de y.

Ce polynôme, dont les coefficients dépendent de z, sera considérablement simplifié, si l'on tient compte des symétries du montage.

— Les axes Ox et Oy sont des axes de symétrie. Le changement de x en $-x$ et de y en $-y$ ne doit donc rien changer à la fonction potentiel. Il en résulte que les coefficients des termes contenant des puissances impaires de x et de y sont nuls.

— D'autre part, le changement de x en y et y en x, qui correspond à une symétrie par rapport à l'une des bissectrices des axes doit simplement changer le signe du potentiel, sans changer sa valeur. Il en résulte que le développement ne peut contenir que des fonctions antisymétriques de x et de y, qui changent de signe par interversion des variables.

On arrive à la forme simplifiée :

$$\frac{\Phi}{\Phi_1} = \alpha\,\frac{x^2 - y^2}{a^2} + \beta\,\frac{x^4 - y^4}{a^4} + \gamma\,\frac{x^6 - y^6}{a^6} + \delta\,\frac{x^2y^2(x^2 - y^2)}{a^6} + \ldots$$

α, β, γ, δ sont des fonctions de z qui ne sont pas indépendantes, car le potentiel doit satisfaire à l'équation de Laplace, ce qui impose :

$$\left(\frac{d^2\alpha}{dz^2} + 12\beta\right)\frac{x^2 - y^2}{a^4} + \left(\frac{d^2\beta}{dz^2} + 30\gamma + 2\delta\right)\frac{x^4 - y^4}{a^4} + \ldots \equiv 0$$

d'où :

$$\beta = -\frac{1}{12}\frac{d^2\alpha}{dz^2} \qquad \delta = -15\gamma + \frac{1}{24}\frac{d^4\alpha}{dz^4}.$$

Finalement, en se limitant aux termes du sixième ordre, on a le développement :

$$(4.2) \quad \left\{ \begin{aligned} \frac{\Phi}{\Phi_1} = \frac{k_1(z)}{a^2}(x^2 - y^2) - \frac{1}{12}\frac{d^2k_1}{dz^2}\cdot\frac{x^4 - y^4}{a^4} + k_2(z)\frac{x^6 - y^6}{a^6} \\ + \left[15k_2 - \frac{1}{24}\frac{d^4k_1}{dz^4}\right]\frac{x^2y^2}{a^6}(y^2 - x^2) + \ldots \end{aligned} \right.$$

Si les électrodes sont très longues, et si l'on se place vers le centre de celles-ci, on peut admettre que l'influence des extrémités est négligeable. Le potentiel ne dépend plus de z et les deux fonctions $k_1(z)$ et $k_2(z)$ se réduisent à deux constantes K_1 et K_2. Le développement prend une forme encore plus simple :

$$(4.3) \qquad \frac{\Phi}{\Phi_1} = K_1\frac{x^2 - y^2}{a^2} + K_2\frac{x^6 - y^6 - 15x^2y^2(x^2 - y^2)}{a^6} + \ldots$$

au dixième ordre près.

Qu'elle que soit la forme des électrodes, il n'y a plus de termes du quatrième ordre. Comme les termes du sixième ordre seront souvent négligeables, on voit que tous les systèmes d'électrodes donnent un potentiel de la forme :

$$(4.4) \qquad \Phi = \Phi_1\frac{K_1}{a^2}(x^2 - y^2)$$

ne dépendant que d'un coefficient numérique K_1 lié à la forme des électrodes.

Fonction caractéristique de l'ensemble du système focalisant. — La fonction $k_1(z)$ qui n'a pas de dimensions physiques, ne peut dépendre que des rapports l/a et z/a, z étant l'abscisse comptée à partir du plan de symétrie de la coupure. Dans tout le système le potentiel sera, au quatrième ordre près :

$$(4.5) \qquad \Phi(x, y, z) = \left[\sum_{n=1}^{N}\Phi_n k_1\left(\frac{z - z_n}{a}\cdot\frac{l_n}{a}\right)\right]\frac{x^2 - y^2}{a^2}.$$

La signification des paramètres est indiquée sur la figure 4. On a donc toujours la même formule :

$$\Phi(x, y, z) = \chi(z)(x^2 - y^2)$$

en appelant :

$$\chi(z) = \frac{1}{a^2} \sum_{n=1}^{N} \Phi_n k_1 \left(\frac{z - z_n}{a}, \frac{l_n}{a} \right) \tag{4.6}$$

la « fonction caractéristique » du système.

Détermination de la fonction caractéristique. — Il faut résoudre l'équation locale (4.1), en tenant compte des conditions aux limites.

Dans le cas des lentilles électriques, la fonction potentiel Φ prend une valeur constante sur la surface des électrodes $+\Phi_1$ ou $-\Phi_1$. Ces conditions sont exploitables mathématiquement dans un certain nombre de cas que nous étudierons dans la suite. Dans tous les autres, l'utilisation d'analogies électriques permet de résoudre le problème ; on pourra utiliser par exemple une cuve rhéographique.

Dans le cas des lentilles magnétiques à fer, le problème est plus complexe. Nous admettrons que les surfaces des pièces polaires sont des équipotentielles magnétiques. Les résultats expérimentaux vérifient correctement cette hypothèse. Nous sommes alors en mesure de déduire le potentiel magnétique du potentiel électrique, en remplaçant, dans l'expression de Φ la différence de potentiel électrique $2\Phi_1$ par la différence de potentiel magnétique entre les pièces polaires $\Delta\Psi$ (cf. figure 6).

Mais il est beaucoup plus difficile de relier cette différence de potentiel $\Delta\Psi$ au nombre d'ampère-tour que l'on rencontre entre les deux pôles. Pour les champs très faibles, on peut admettre que la perméabilité du fer est sensiblement infinie. De ce fait le champ dans le fer est pratiquement nul et l'on a, en vertu du théorème d'Ampère :

$$\Delta\Psi \simeq nI. \tag{4.7}$$

Mais cette hypothèse est très mal vérifiée sitôt que l'on cherche à produire des champs intenses. Il faut alors faire des mesures du champ magnétique.

Nous avons effectué des mesures par la méthode de la bobine tournante. Une petite bobine, de quelques millimètres carrés de surface est mobile autour d'un axe contenu dans son plan. Elle est entraînée par un moteur synchrone. L'axe est parallèle à Oz. Il est alors évident que la présence de $\vec{B}$ entraîne une f. e. m. d'induction dans la bobine ; la valeur efficace de cette f. e. m. est proportionnelle à la valeur absolue de la composante du V_{eff} de l'induction $\sqrt{B_X^2 + B_Y^2}$ perpendiculaire à l'axe Oz :

$$\sqrt{B_X^2 + B_Y^2} = K \cdot V_{eff}.$$

Le coefficient K est déterminé par un étalonnage à l'aide d'un champ uniforme, dont la valeur est donnée par des mesures de

résonance nucléaire. Au cours des mesures que nous avons effectuées nous avions :

$$K = 1{,}78.10^6 \text{ gauss/volt-eff}$$

la précision des mesures est de l'ordre de 3 p. 100 ; il s'ajoute une autre cause d'erreur difficilement évaluable : celle qui résulte des imprécisions de mise en place de la bobine par rapport aux pièces polaires.

Choix de la forme optima pour les électrodes.

Electrodes hyperboliques. — La section droite est représentée par les deux hyperboles :

$$\frac{x^2 - y^2}{a^2} = \pm 1.$$

La figure 7 montre l'aspect de cette lentille dans sa version électrique. C'est cette forme d'électrodes qu'ont proposée Courant, Livingston et Snyder (16) pour leur lentille magnétique.

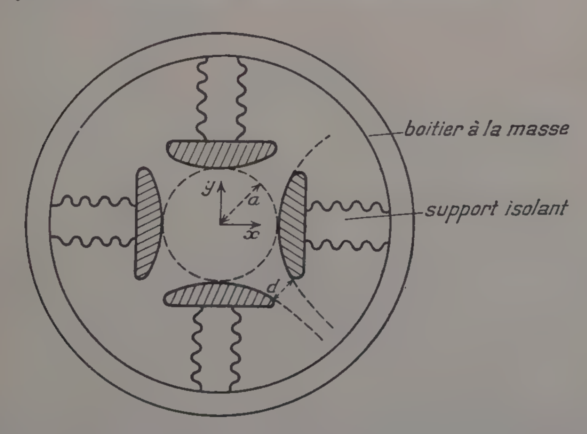


Fig. 7. — Section droite d'une lentille à forte convergence dans le cas des électrodes hyperboliques.

Nous appliquerons le résultat classique de la représentation conforme. La fonction :

$$\Phi(x, y) = \Phi_1 \frac{x^2 - y^2}{a^2}$$

satisfait à l'équation de Laplace et aux conditions aux limites. On a donc :

$$K_1 = 1 \qquad K_2 = 0.$$

Ce résultat n'est valable que dans la mesure où les électrodes sont des hyperboles complètes. Il est évident qu'elles seront limitées par un entrefer de largeur d. Les cartes, tracées à la cuve rhéographique, montrent que cet entrefer peut atteindre une largeur de l'ordre de $0{,}75a$ sans que la relation (4.8) cesse d'être valable dans la région utile de la lentille (c'est-à-dire le cercle de rayon a).

Nous avons pu effectuer des mesures magnétiques sur une lentille obligeamment mise à notre disposition par le Commissariat à l'Energie Atomique. Les paramètres géométriques avaient les valeurs suivantes :

$$l = 12{,}5 \text{ cm} \qquad a = 2 \text{ cm} \qquad n = 900 \text{ tours.}$$

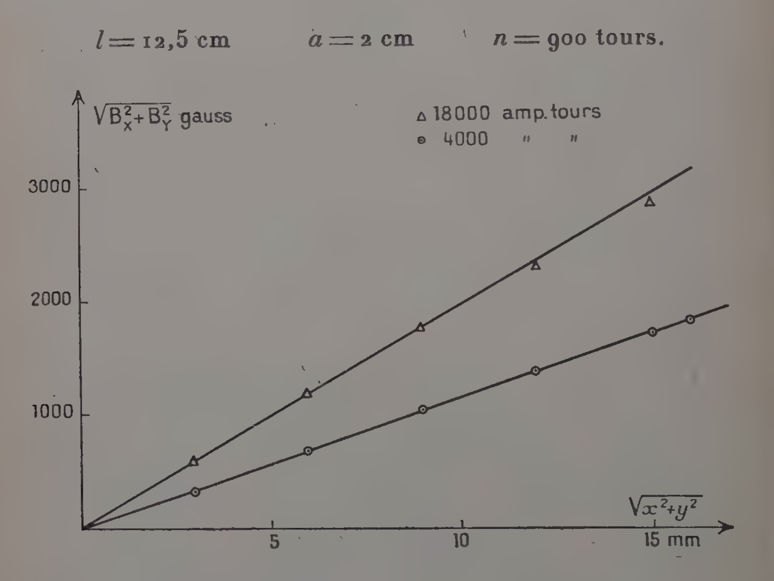


Fig. 8. — Mesure du champ magnétique en fonction de la distance à l'axe.

La figure 8 montre quelques-unes des courbes obtenues en portant en abscisses $r = \sqrt{x^2 + y^2}$ et en ordonnées $B = \sqrt{B_X^2 + B_Y^2}$. Cette mesure a été effectuée suivant divers azimuths. Nous constatons bien que :

$$B = Kr$$

ce que l'on déduit sans peine de la relation (4.8) appliquée aux lentilles magnétiques. Nous vérifions ainsi l'hypothèse suivant laquelle la surface des pièces polaires est une équipotentielle magnétique, puisque la formule (4.8) repose sur cette hypothèse.

La mesure de K permet de connaître la différence de potentiel magnétique entre les deux pièces polaires nord et sud. On trouve :

$$\Delta\Psi = \frac{2a^2K}{\mu_0}.$$

Nous avons mesuré $\Delta\Psi$ pour diverses valeurs de nI. Les résultats sont portés sur la figure 9. Au voisinage de l'origine, on a bien $\Delta\Psi \simeq n\text{I}$ comme l'indique la droite, mais très rapidement on obtient

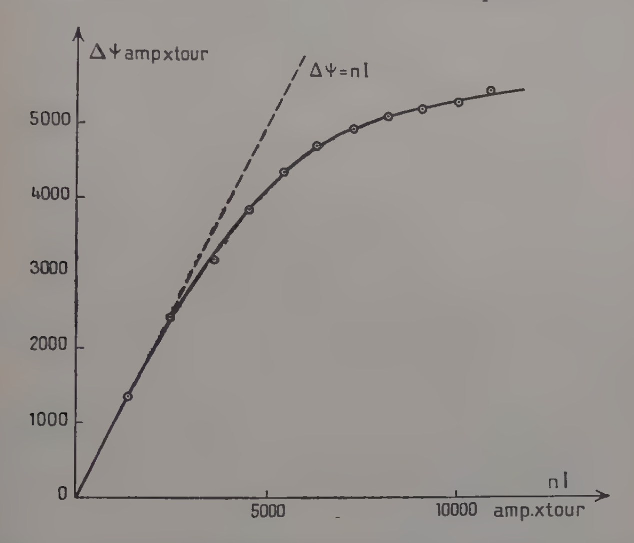


Fig. 9. — Potentiel magnétique entre les deux pièces polaires, en fonction du nombre d'ampère-tour.
En pointillés, la droite qui résulterait de l'hypothèse de la perméabilité infinie.

des valeurs qui sont inférieures de 50 p. 100 à celle que l'on calculerait en supposant la perméabilité infinie. Dans la suite de ce mémoire, lorsque nous chercherons un ordre de grandeur du courant nécessaire, nous adopterons l'hypothèse de la perméabilité infiuie. Nous obtiendrons ainsi une limite inférieure de l'intensité réellement nécessaire.

Electrodes planes. — Les électrodes sont des plans dont les sections droites sont les segments de droites :

$$x = \pm a \qquad y = \pm a$$

correspondant au schéma de la figure 10.

Nous avons intégré l'équation de Laplace avec les conditions aux limites correspondantes, par séparation des variables. Compte tenu des symétries, la solution s'écrit :

$$(4.9) \qquad \Phi(x, y) = \sum_{n=0}^{\infty} A_n [\cos k_n x . \operatorname{ch} k_n y - \operatorname{ch} k_n x . \cos k_n y].$$

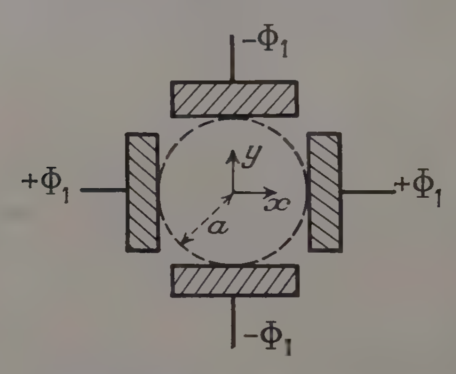


Fig. 10. — Section droite d'une lentille à convergence forte. Cas des électrodes planes.

Les fonctions A_n se déterminent en écrivant que la fonction satisfait aux conditions aux limites. On trouve, après quelques calculs :

$$(4.10) \left\{ \begin{array}{l} \Phi(x, y) = \dfrac{4\Phi_1 a}{\pi} \displaystyle\sum_{n=0}^{\infty} \dfrac{(-1)^n}{(2n+1) \operatorname{ch} \dfrac{(2n+1)\pi}{2}} \\ \left[\cos \dfrac{(2n+1)\pi x}{2a} . \operatorname{ch} \dfrac{(2n+1)\pi y}{2a} - \operatorname{ch} \dfrac{(2n+1)\pi x}{2a} \cos \dfrac{(2n+1)\pi y}{2a}\right] \end{array} \right.$$

Un développement limité nous conduit aux valeurs :

$$K_1 = 1{,}037 \qquad K_2 = 0{,}009.$$

La modification subie par le potentiel en remplaçant les hyperboles par leur tangente au sommet est très faible. Il sera donc inutile de faire des hyperboles exactes ; il suffira de prendre les cercles surosculateurs, qui introduiront des modifications inférieures à celles des plans, donc négligeables. C'est bien ce que l'on vérifie à la cuve rhéographique.

Electrodes de révolution autour de Oz. — Les électrodes sont constituées par des portions de cylindre de révolution autour de Oz.

La figure 11 donne l'allure de la section droite d'une telle lentille. Nous admettrons que le potentiel varie linéairement dans la coupure,

depuis $+\Phi_1$ jusqu'à $-\Phi_1$. Nous étendons une hypothèse faite par Bertram (7) (8) dans un autre cas. Des mesures effectuées à la cuve rhéographique montrent que cette hypothèse est légitime pourvu que les électrodes soient suffisamment épaisses, car, pour les électro-

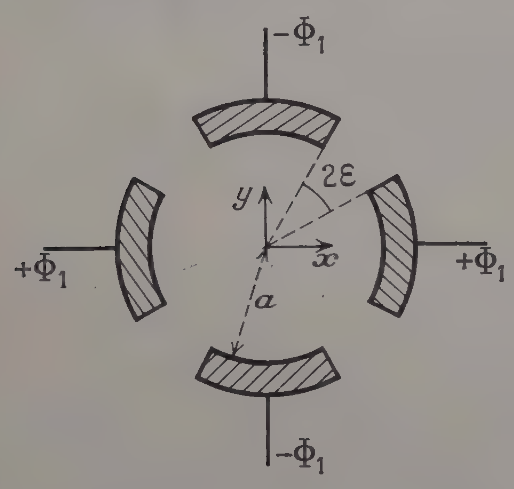


Fig. 11. — Section droite d'une lentille à convergence forte.
Cas des électrodes cylindriques de révolution.

des minces, des effets de pointes s'opposent à cette répartition régulière.

Nous intégrons l'équation de Laplace par séparation des variables. La fonction de base s'écrit :

$$\Phi(r, \theta) = \sum_{n=0}^{\infty} A_n r^{4n+2} \cos(4n+2)\theta \tag{4.11}$$

compte tenu de la symétrie du montage. Nous écrivons que (4.11) satisfait aux conditions aux limites, ce qui nous donne la solution définitive :

$$\Phi(r, \theta) = \frac{8\Phi_1 r^2}{\pi a^2} \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n \left(\frac{r}{a}\right)^{4n} \frac{\sin(4n+2)\varepsilon}{\varepsilon} \frac{\cos(4n+2)\theta}{(4n+2)^2} \tag{4.12}$$

et un développement limité nous conduit à :

$$K_1 = 1{,}273\left(\frac{\sin 2\varepsilon}{2\varepsilon}\right) \qquad K_2 = 0{,}042\left(\frac{\sin 6\varepsilon}{6\varepsilon}\right).$$

Ainsi, les coefficients ne dépendent de la largeur de l'entrefer qu'au second ordre.

A titre d'exemple, une coupure de 1 cm sur des électrodes de 3 cm de rayon modifie le potentiel de 7 p. 100 de sa valeur pour une coupure infiniment mince.

Comparaison entre les divers modèles d'électrodes. — Au point de vue de la valeur du champ, ce sont les électrodes de révolution autour de Oz qui sont les plus avantageuses. Toutes choses égales par ailleurs, elles donnent un champ de 30 p. 100 plus important, pour une même valeur du potentiel d'alimentation des électrodes.

Comme les lentilles fonctionneront le plus souvent avec de hauts potentiels d'alimentation, il est intéressant de choisir une forme d'électrodes qui donnent le champ le plus intense, pour le même potentiel.

Mais, par contre, les électrodes hyperboliques ont un intérêt fondamental; elles n'ont pas de terme d'ordre supérieur dans le développement de Φ. Le potentiel est rigoureusement égal à $\Phi_1 \frac{x^2 - y^2}{a^2}$, dans toute la lentille.

On peut utiliser toute la largeur de la lentille.

En réalité, il faut être prudent car au voisinage des coupures, on verra réapparaître des termes du quatrième ordre. En tous cas il semble que l'on puisse tolérer un faisceau de diamètre 0,7 a.

Considérons alors deux systèmes d'électrodes, l'un hyperbolique, de paramètre a et l'autre cylindrique de révolution, de rayon a'. Ces deux systèmes doivent donner le même champ au voisinage de l'axe et sont alimentés par le même potentiel Φ_1. Ces conditions exigent $a' = 1{,}13a$.

Prenons un faisceau de 0,7a de rayon. Les termes d'aberration, du sixième ordre, sont nuls pour la lentille hyperbolique. Pour la lentille de révolution autour de Oz, ils valent, sur les bords de faisceau, environ 0,024Φ_1. Le terme principal du potentiel est de l'ordre de 0,49Φ_1.

La perturbation ainsi introduite est donc de l'ordre de 5 p. 100.

Cette erreur n'est pas négligeable. Lorsque l'ordre de grandeur du potentiel nécessaire le permettra, on aura intérêt à prendre des pièces hyperboliques. De toutes façons, au voisinage des coupures, comme le signale Bell (2) il faut revenir à des pièces cylindriques de révolution, sous peine de perturber le champ H. F.

Influence des bords de la coupure.

Jusqu'ici, nous avons supposé que nous étions suffisamment éloigné des bords des électrodes, pour admettre que les phénomènes étaient indépendants de z. Si l'on se rapproche des extrémités, des perturbations apparaissent, qui font naître des termes du quatrième ordre, comme l'indique la relation (4.2).

Nous allons faire le calcul dans le cas d'électrodes circulaires, d'axe Oz. On aboutit ainsi à des fonctions de Bessel qui sont bien tabulées. Par contre, dans le cas des électrodes hyperboliques, où le calcul est aussi possible, on obtient des séries qui s'expriment avec des fonctions de Mathieu, dont il n'existent pas de tables très détaillées. Comme il s'agit simplement d'obtenir un ordre de grandeur, les résultats obtenus dans le cas des lentilles cylindriques seront suffisants.

Principe du calcul. — Nous intégrons encore l'équation de Laplace par séparation des variables. Compte tenu de la symétrie, nous prendrons la solution sous la forme d'une somme double :

$$(4.13) \quad \Phi(r, \theta, z) = \int_0 \left[\sum_{n=0} A_n(k) J_{4n+2}(jkr) \cos(4n+2)\theta\right] \sin kz dk.$$

Nous déterminerons les fonctions $A_n(k)$ en écrivant que la fonction $\Phi(r, \theta, z)$ ainsi définie satisfait aux conditions aux limites.

En négligeant l'influence des coupures on trouve :

$$(4.14) \left\{ \begin{aligned} &\Phi(r, \theta, z) = \frac{4\Phi_1}{\pi^2} \\ &\int_0^\infty \left[\sum_{n=0} \frac{(-1)^n \cos(4n+2)\theta . J_{4n+2}(jkr)}{(4n+2) J_{4n+2}(jka)}\right] \frac{\sin kz (1 - \cos kl)}{k} dk. \end{aligned} \right.$$

Un développement limité donne alors les valeurs de :

$$(4.15) \qquad k_1(z) = -\frac{a^2}{\pi^2} \int_0^\infty \frac{\sin kz (1 - \cos kl)}{J_2(jka)} k . dk.$$

Le calcul numérique d'une telle intégrale est assez pénible. Il est préférable de la transformer en utilisant une seule fonction :

$$(4.16) \qquad I(u) = \frac{1}{2\pi} \int_0^\infty \frac{k \sin ku}{J_2(jk)} dk.$$

Une intégration par la méthode des résidus conduit à l'expression :

$$I(u) = -\left[2 + \frac{1}{2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{x_n e^{-x_n u}}{J_1(x_n)}\right] \qquad J_2(x_n) = 0$$

dont nous donnons ci-dessous les principales valeurs numériques :

u	0	0,1	0,2	0,3	0,4	0,5	0,6	0,7	0,8	0,9	1	1,25	∞
$-I(u)$ . .	0	0,50	0,91	1,22	1,44	1,61	1,73	1,82	1,89	1,93	1,96	1,98	2

Nous obtenons finalement :

$$k_1(z) = \frac{1}{\pi}\left[-2\mathrm{I}\left(\frac{z}{a}\right) + \mathrm{I}\left(\frac{z+l}{a}\right) + \mathrm{I}\left(\frac{z-l}{a}\right)\right]. \tag{4.17}$$

Allure de la fonction $k_1(z)$. — La figure 12 donne l'allure de la courbe représentative de la fonction $k_1(z)$ dans le cas où l est plus grand que a, ce qui constitue le cas général. Dans le cas d'électrodes très courtes, la courbe n'a pas de palier, mais un maximum d'ordonnée inférieure à K_1. Il est clair que de telles lentilles n'auront qu'une convergence faible.

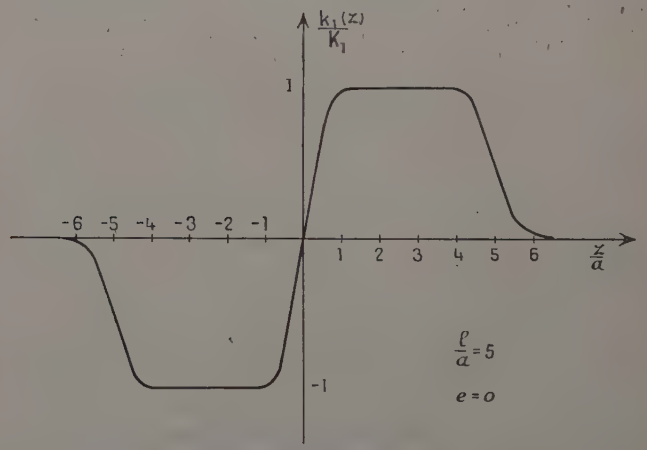


Fig. 12. — Allure de la fonction $k_1(z)$ dans le cas d'une lentille à électrodes cylindriques de révolution.

On constate que les perturbations apportées par les extrémités pénètrent d'environ a à l'intérieur de la lentille.

D'autre part les termes du quatrième ordre, dans le développement de Φ sont proportionnels à $\frac{d^2k_1}{dz^2}$; on constate donc qu'ils sont négligeables dans la plus grande partie de la lentille, la fonction $k_1(z)$ étant presque toujours voisine d'une droite.

D'autre part nous avons mesuré le champ de la lentille magnétique à forte convergence, vers les extrémités des pièces polaires.

La loi de répartition linéaire de $\sqrt{B_X^2 + B_Y^2} = B$ en fonction de $\sqrt{x^2 + y^2} = r$ perd alors sa validité, mais l'on peut toujours définir un gradient limite au voisinage de l'axe, par la relation :

$$k = \lim_{r \to 0} \frac{B}{r}.$$

La figure 13 donne les valeurs de ce gradient en fonction de l'abscisse comptée à partir de la coupure de la lentille tout comme dans la figure 12.

La décroissance de la fonction $k(z)$ est rapide ; elle s'étend sur une longueur de l'ordre de 4 cm. sensiblement.

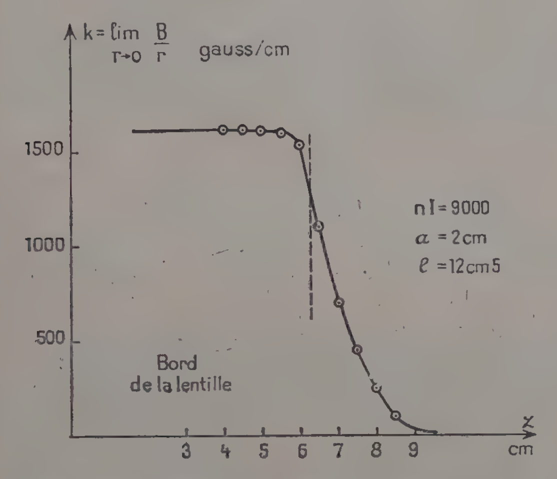


Fig. 13. — Valeur expérimentale du gradient de champ au voisinage de l'axe, dans une lentille magnétique à pièces polaires hyperboliques.

Nous pourrons donc représenter la fonction caractéristique par une courbe en escalier (fig. 16) pour traiter le problème du mouvement des corpuscules. L'erreur ainsi commise sera d'autant plus faible que l sera plus grand devant a.

CHAPITRE V

TRAJECTOIRE DE LA PARTICULE « TYPE » DANS LE SYSTÈME DE LENTILLES. CONDITION DE STABILITÉ LATÉRALE

Nous allons calculer la trajectoire d'une particule soumise à la fois aux champs H. F., défocalisants, et aux champs statiques des lentilles. Nous pourrons ainsi déterminer les caractéristiques des lentilles qui obligent la trajectoire à rester au voisinage de l'axe, donc qui assurent la stabilité latérale de l'appareil.

Comme nous l'avons fait au chapitre II, nous étudierons la trajectoire de la particule « type », qui joue le rôle fondamental dans la dynamique de l'appareil.

Les autres particules accélérées se groupent autour de la particule-type; elles seront donc soumises à des conditions de focalisation voisines. Il conviendra néanmoins de prendre garde à des résonances entre les oscillations longitudinales et les oscillations latérales créées par la focalisation. De telles résonances ont été mises en évidence par Bell (3) en certains points d'un accélérateur très long dont la stabilité est assurée par des grilles. Nous ne les étudierons pas ici.

Principe de l'étude.

Equation du mouvement. — La particule-type est soumise à deux forces :

— d'abord la force due au champ H. F. que nous avons calculée au chapitre II. Nous avons les expressions suivantes :

$$(5.1)\quad \begin{cases} F_{x,y} = ek(z)\begin{bmatrix} x \\ y \end{bmatrix} \qquad k(z) \simeq -\nu\omega \operatorname{ctg} \varphi_s \sqrt{\dfrac{MK}{2e}^{1/\nu}}\, \Phi^{\frac{\nu-1}{2\nu}} \\ F_z = e2\nu K z^{2\nu-1} \end{cases}$$

dont on trouvera la justification aux pages 641 et 646.

— ensuite les forces créées par les lentilles focalisatrices qui s'écrivent, dans le cas des lentilles électriques :

$$(5.2)\qquad F_{x,y} = -2e\chi(z)\begin{bmatrix} x \\ -y \end{bmatrix} \qquad F_z = -e\frac{d\chi}{dz}(x^2 - y^2)$$

en négligeant les termes du troisième ordre, comme dans les expressions (5.1). $\chi(z)$ est la fonction caractéristique du système de lentilles calculée comme il est indiqué à la page 657.

On aura des expressions analogues pour les lentilles magnétiques. Finalement, les équations du mouvement s'écrivent :

$$(5.3)\qquad \begin{cases} x''_{t^2} = \dfrac{e}{M}[k(z) - 2\chi(z)]x \\ y''_{t^2} = \dfrac{e}{M}[k(z) + 2\chi(z)]y \\ z''_{t^2} = \dfrac{e}{M}\left[2\nu K z^{2\nu-1} - \dfrac{d\chi}{dz}(x^2 - y^2)\right]. \end{cases}$$

Dans le cas des lentilles magnétiques, on établirait, de la même façon le système :

$$(5.3\ bis)\quad \begin{cases} x''_{t^2} = \frac{e}{M}[k(z)x + 2\mu_0\chi_M(z)yz'_t] \\ y''_{t^2} = \frac{e}{M}[k(z)y + 2\mu_0\chi_M(z)xz'_t] \\ z''_{t^2} = \frac{e}{M}[2\nu K z^{2\nu-1} - \mu_0 \frac{d\chi_M}{dz}(xy'_t - yx'_t)]. \end{cases}$$

Ces équations sont légèrement différentes des précédentes, mais les deux premières qui seront dans la suite les seules importantes prennent la même forme, si l'on effectue le changement de variable :

$$(5.4)\qquad X = x - y \qquad Y = x + y$$

ce qui revient à faire tourner les axes de 45° autour de Oz. Nous voyons apparaître ici cette rotation prévue à la page 655.

Nous nous bornerons, dans la suite à l'étude du système (5.3), le second s'y ramenant par le changement (5.4) et par le remplacement de $\chi(z)$ par $\mu_0\chi_M(z)z'_t$.

Mouvement longitudinal. — Si l'on se borne à l'approximation gaussienne on néglige les termes du second ordre. L'équation du mouvement longitudinal n'est donc pas perturbée par les lentilles focalisatrices et la particule-type a toujours la même équation horaire, donnée par la relation (1.7) :

$$z^{1-\nu} = z_i^{1-\nu} + \sqrt{\frac{2eK}{M}}(t - t_i).$$

Les lentilles focalisatrices agissent sur le mouvement longitudinal par un terme du second ordre dont il faut étudier l'influence.

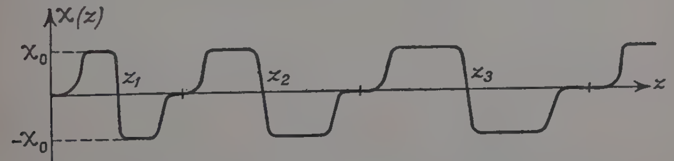


Fig. 14. — Allure de la fonction caractéristique d'un système à convergence forte.

L'examen de la figure 14 montre que la dérivée de la fonction caractéristique $\frac{d\chi}{dz}$ ne diffère de zéro que dans les coupures entre lentilles focalisatrices.

Soit une telle coupure, à l'abscisse z_N. La fonction caractéristique passe de $+\chi_0$ à $-\chi_0$ dans un court intervalle d'abscisse, de $z_N - \varepsilon$ à $z_N + \varepsilon$. Intégrons l'équation du mouvement longitudinal de $z_N - \varepsilon$ à $z_N + \varepsilon$, puis faisons tendre ε vers zéro.

On obtient, pour les lentilles électriques.

$$\Delta(z_t')^2 = -\frac{e}{M} 4\chi_0(x^2 - y^2). \tag{5.5}$$

Ainsi, lorsque la particule franchit une coupure entre deux lentilles au point de coordonnées x et y, elle est soumise à une brusque variation de vitesse, donnée par l'équation (5.5). Il en résulte une variation de son énergie $\Delta\Phi$ donnée en électron-volt par :

$$\Delta\Phi \simeq 2\chi_0(x^2 - y^2).$$

$\Delta\Phi$ peut être nul, si la particule est à ce moment sur une des bissectrices. Il peut au contraire être important si la particule passe sur l'axe Ox par exemple.

Considérons un accélérateur à protons ; le faisceau a un diamètre de l'ordre de 1 cm, il est stabilisé latéralement par des lentilles, d'ouverture $a = 1$ cm, auxquelles on applique des potentiels de $\pm$ 40 000 volts.

En se plaçant dans les conditions les plus défavorables, on trouve une variation de potentiel $\Delta\Phi$ de l'ordre de 20 000 volt pour des particules de 1 MeV. On a sensiblement :

$$\frac{\Delta\Phi}{\Phi} \simeq 2\ \%.$$

Cet effet sera nuisible, car il créera des oscillations longitudinales des particules autour de leur position de référence. Ces oscillations risquent de s'amplifier et de faire décrocher les particules.

Nous nous limiterons, dans ce qui va suivre à des faisceaux étroits, voisins de l'axe du système, de façon à ce que la variation de potentiel $\Delta\Phi$ soit négligeable et qu'en première approximation, la *particule-type conserve son mouvement décrit par l'équation horaire* (1.7). Nous déterminerons ainsi les conditions de stabilité d'un faisceau très étroit.

Cette hypothèse est tout à fait admissible, pour déterminer un ordre de grandeur des potentiels de focalisation. En effet, c'est au début de l'appareil que la perturbation $\Delta\Phi/\Phi$ sera la plus élevée. Or, on peut injecter les particules, avec un canon bien construit qui donne un faisceau très étroit et légèrement convergent. Les particules resteront au voisinage de l'axe et l'on peut négliger $(x^2 - y^2)$. Ensuite le faisceau s'élargira sous diverses influences, mais l'énergie Φ augmente et les perturbations $\Delta\Phi/\Phi$ resteront négligeables.

Principe de l'intégration du système (5.3). — Nous supposons donc que la vitesse axiale n'est pas sensiblement modifiée. Nous pouvons

donc éliminer le temps entre les deux premières équations (5.3) et l'équation horaire (1.7) du mouvement longitudinal, ce qui donne :

$$(5.6)\qquad \begin{cases} \dfrac{d^2x}{dz^2} + \dfrac{\nu}{z}\dfrac{dx}{dz} - \dfrac{z^{-2\nu}}{2K}[k(z) - 2\chi(z)] = 0 \\ \dfrac{d^2y}{dz^2} + \dfrac{\nu}{z}\dfrac{dy}{dz} - \dfrac{z^{-2\nu}}{2K}[k(z) + 2\chi(z)] = 0. \end{cases}$$

Ces équations ne semblent pas se ramener à un type connu, intégrable par des fonctions tabulées. Si l'on fait tendre ν vers zéro, ce qui revient à étudier le mouvement latéral dans une onde à vitesse constante, on obtient une équation de Hill.

On sait qu'une telle équation, suivant les valeurs de ses paramètres, à des solutions bornées, ou non bornées. On conçoit qu'il en sera de même pour le système (5.6) et que suivant les valeurs de la fonction caractéristique $\chi(z)$ les fonctions x, y resteront bornées ou au contraire augmenteront indéfiniment.

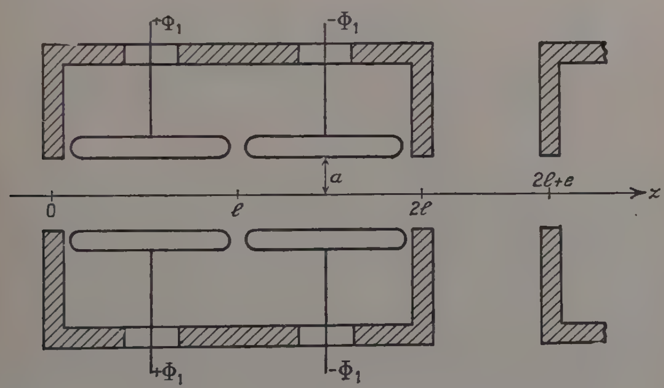


Fig. 15. — Coupe d'une lentille focalisatrice placée à l'intérieur du tube de glissement.

Nous allons intégrer pas à pas les équations (5.3). L'intervalle fondamental sera la distance qui sépare l'entrée d'une lentille de l'entrée de la lentille suivante. La figure 15 montre cet intervalle, qui comprend :

— une section convergente (ou divergente) de longueur l;

— une section divergente (ou convergente) de longueur l;

— une coupure, de largeur e dans laquelle la particule est soumise seulement aux champs H. F., et qui est donc divergente d'après ce que nous savons de l'action des champs H. F.

Nous admettrons que dans cet intervalle le potentiel Φ de la particule reste sensiblement constant, égal à sa valeur moyenne. De plus

nous remplacerons $\chi(z)$ par une représentation approchée, indiquée sur la figure 16. Il est alors possible d'intégrer les équations (5.3), comme nous le verrons en détail au chapitre suivant.

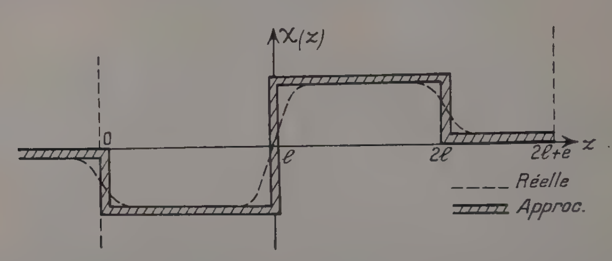


Fig. 16. — Représentation approchée de la fonction caractéristique dans l'intervalle d'intégration choisi.

Nous obtiendrons ainsi la matrice de transformation de la section considérée, qui permet de connaître les valeurs de x_1, x'_1 à la sortie, connaissant celles à l'entrée. On aura :

$$(5.7) \qquad \left\| \begin{matrix} x_1 \\ x'_1 \end{matrix} \right\| = \left\| \begin{matrix} A & B \\ C & D \end{matrix} \right\| \cdot \left\| \begin{matrix} x_0 \\ x'_0 \end{matrix} \right\|$$

pour x et une matrice analogue pour y.

Il suffira alors d'effectuer le produit de ces matrices, pour obtenir les coordonnées d'une trajectoire à la sortie. Mais il ne s'agit pas tant de calculer l'ensemble de la trajectoire que de chercher la condition pour que la trajectoire reste au voisinage de l'axe, dans chacun des intervalles.

Il faudra donc exprimer une condition sur chaque matrice d'intervalle. Cette condition nous est fournie par un cas particulier du théorème de Floquet, dont nous rappelons la démonstration en annexe :

Il suffit que la trace de chaque matrice d'intervalle soit comprise entre -2 *et* $+2$ *pour que la trajectoire reste bornée dans tout l'appareil :*

$$(5.8) \qquad -2 \leqslant A + D \leqslant +2.$$

Nous aurons donc assuré la stabilité, si nous choisissons, pour les lentilles, des paramètres tels que l'on ait :

$$-2 \leqslant A + D \leqslant +2.$$

En particulier, la valeur-limite $+2$ sera la plus aisément réalisable. Elle correspond à une trajectoire restant à une distance constante de l'axe en moyenne. Les lentilles compensent exactement les forces défocalisantes des champs H. F.

Nous prendrons cette condition limite dans la suite de cette étude.

Expression de la condition de stabilité.

Equations finies de la trajectoire. — En adoptant les hypothèses précisées au paragraphe précédent, les équations du mouvement se transforment en des équations linéaires, à coefficients constants, dans chacun des intervalles.

Nous avons, pour la coordonnée x :

$$(5.9)\quad \left\{\begin{array}{ll} \frac{d^2x}{dz^2} - (\beta^2+\gamma^2)x = 0 & 0 < z < l \\ \frac{d^2x}{dz^2} + (\beta^2-\gamma^2)x = 0 & l < z < 2l \\ \frac{d^2x}{dz^2} - \gamma^2 x = 0 & 2l < z < 2l+e \end{array}\right.$$

avec :

$$\gamma = \sqrt{\frac{k(z)}{2\Phi}} \qquad \beta = \sqrt{\frac{K_1\Phi_1}{a^2\Phi}}.$$

Un système analogue décrirait la coordonnée y.

Dans le cas de la lentille magnétique, il suffit de changer x en X, y en Y et de modifier la signification de la constante β qui devient β' :

$$\beta' = \sqrt{\frac{K_1\mu_0\Delta\Psi}{a^2\sqrt{\Phi}}\sqrt{\frac{2e}{M}}}.$$

La trajectoire complète s'obtiendra en raccordant des arcs de sinusoïdes (circulaires ou hyperboliques). Les brusques discontinuités de $\chi(z)$ introduites dans la représentation approchée de la fonction caractéristique de la lentille, ne réagissent pas sur x.

Matrice de transformation. — Nous poserons :

$$\beta^2+\gamma^2=\alpha^2 \qquad \beta^2-\gamma^2=\omega^2.$$

Nous passons sur les calculs qui conduisent à la matrice de transformation. On obtient :

$$(5.10)\quad \left\|\begin{array}{cc} \text{ch}\,\gamma e & \frac{\text{sh}\,\gamma e}{\gamma} \\ \gamma\,\text{sh}\,\gamma e & \text{ch}\,\gamma e \end{array}\right\| \cdot \left\|\begin{array}{cc} \cos\omega l & \frac{\sin\omega l}{\omega} \\ -\omega\sin\omega l & \cos\omega l \end{array}\right\| \cdot \left\|\begin{array}{cc} \text{ch}\,\alpha l & \frac{\text{sh}\,\alpha l}{\alpha} \\ \alpha\,\text{sh}\,\alpha l & \text{ch}\,\alpha l \end{array}\right\|$$

La trace qui est essentielle pour l'établissement de la condition de stabilité est :

$$(5.11)\quad \left\{\begin{array}{l} T = \text{ch}\,\gamma e\left[2\,\text{ch}\,\alpha l.\cos\omega l + \frac{2\gamma^2}{\alpha\omega}\sin\omega l.\text{sh}\,\alpha l\right] \\ \qquad + \text{sh}\,\gamma e\left[\frac{2\gamma^2+\beta^2}{\alpha\gamma}\text{sh}\,\alpha l.\cos\omega l + \frac{2\gamma^2-\beta^2}{\omega\gamma}\sin\omega l.\text{ch}\,\alpha l\right]. \end{array}\right.$$

Nous allons simplifier cette expression ; en effet, les lentilles ne sont pratiquement utilisables que si elles ne modifient pas trop la trajectoire. Sinon, les particules s'éloigneraient dangereusement de l'axe, dans les parties divergentes du montage.

On peut donc admettre que βl et γl sont suffisamment petits pour que l'on puisse remplacer les fonctions sinusoïdales et hyperboliques par leur développement limité au sixième ordre, ce qui constitue une bonne approximation.

On obtient alors une expression simplifiée de la trace :

$$(5.12)\quad \left\{ \begin{aligned} & \mathrm{T} = 2 + \gamma^2[e^2 + 4l^2 + 4el] \\ & + \gamma^4\left[\frac{4}{3} l^4 + \frac{1}{12} e^4 + 2e^2l^2 + \frac{8}{3} el^3 + \frac{2}{3} e^3 l\right] - \beta^4\left[\frac{l^4}{3} + \frac{2}{3} l^3 e\right]. \end{aligned} \right.$$

La condition de stabilité s'écrit après quelques transformations :

$$(5.13)\qquad \sqrt{\frac{\mathrm{A}\gamma^2 + \mathrm{B}\gamma^4}{\mathrm{C}}} \leqslant \beta^2 \leqslant \sqrt{\frac{2 + \mathrm{A}\gamma^2 + \beta\gamma^4}{\mathrm{C}}}$$

avec :

$$\mathrm{A} = 2l^2 + 2el + \frac{l^2}{2} \qquad \mathrm{B} = \frac{2}{3} l^4 + \frac{1}{24} l^4 + e^2l^2 + \frac{4}{3} el^3 + \frac{1}{3} e^3 l$$

$$\mathrm{C} = \frac{l^4}{6} + \frac{1}{3} l^3 e.$$

Cette inégalité permettra de choisir les valeurs de Φ_1 (ou du courant magnétisant, si l'on prend des lentilles magnétiques) qui assurera la stabilité.

Taux d'oscillations résiduelles. — Nous prendrons dans la suite, comme condition-limite de stabilité $\mathrm{T} = +2$, comme nous l'avons déjà signalé. C'est en effet la condition la plus facile à réaliser, celle qui exigera les potentiels les moins élevés. Si ces potentiels sont réalisables, on pourra envisager la réalisation du montage.

En première approximation, un faisceau parallèle injecté dans l'appareil, garde une section constante. En réalité, au cours de la traversée de la lentille chaque particule est soumise, à des forces convergentes et à des forces divergentes de sorte que sa distance à l'axe, constante en moyenne, varie entre deux limites d_1 et d_2.

Nous appelons « taux d'oscillations résiduelles » le rapport :

$$\varepsilon = \frac{1}{2}\left(\frac{d_1 - d_2}{d_1 + d_2}\right).$$

Les équations finies de la trajectoire établies au paragraphe précédent nous permettent d'obtenir une expression de ce taux. On a :

$$(5.14)\qquad \varepsilon \simeq \beta^2 l^2.$$

Le taux ne saurait dépasser une certaine valeur, sous peine de restreindre l'ouverture utile de l'appareil. On peut admettre un taux de l'ordre de 30 o/o. Cela impose donc une limite supérieure à la longueur des lentilles.

Applications des relations précédentes.

Choix des paramètres géométriques. — Fixons d'abord l'ouverture de lentille a. Il est évident que les lentilles auront un effet d'autant plus intense que a sera plus petit. Il sera donc essentiel de placer les lentilles à l'intérieur du tube accélérateur ; a sera de l'ordre de quelques centimètres.

Il faut maintenant déterminer les paramètres l et e. Dans les accélérateurs existants, il y a un rapport constant entre la largeur de la coupure accélératrice e et la distance entre deux coupures $2l + e = \Lambda$.

Adoptons, comme Alvarez, un rapport de 25 p. 100. Nous avons alors :

$$l = \frac{3}{8}\Lambda \qquad e = \frac{1}{4}\Lambda^2$$

et par suite :

$$\frac{A}{C} = 65\frac{1}{\Lambda^2} \qquad \frac{B}{C} = 5{,}42.$$

Quant à Λ c'est la distance parcourue par la « particule-type » pendant une période. C'est sensiblement :

$$\Lambda \simeq \frac{1}{f}\sqrt{\frac{2e\Phi}{M}}\,.$$

Cas des lentilles électriques. — Tous les résultats précédents nous conduisent à une formule simple pour la valeur du potentiel électrique Φ_1 qui alimente les électrodes. On trouve :

$$\Phi_1 \simeq 8{,}3.10^{-6}\frac{a^2}{K_1}K^{1/4\nu}\Phi^{\frac{1-\nu}{4\nu}}\sqrt{\nu f^3\,|\,\mathrm{ctg}\,\varphi_s\,|}\,. \tag{5.15}$$

Le tableau ci-dessous donne un certain nombre de valeurs numériques déduites de cette formule, pour l'appareil qui a déjà servi d'exemple (1 à 4 MeV en 3 m, $a = 1{,}5$ cm pièces hyperboliques).

ν	Φ_i volt	ε_i	Φ_f volt	ε
1/3.	37 000	44 o/o	18 000	22 o/o
1/2.	29 000	36 »	20 000	26 »
2/3.	26 000	32 »	22 000	28 »
1	24 000	30 »	24 000	30 »

Ces valeurs sont un peu grandes, mais restent néanmoins réalisables. D'après ce que nous avons dit page 28, on peut tolérer pour des pièces hyperboliques, des entrefers de l'ordre de $0,75a$, ce qui correspond à 11 mm environ dans notre exemple. Des mesures de tenue de tension, entreprises au Laboratoire de Radioélectricité par R. Arnal, montrent qu'une tension de 100 000 volts peut être appliquée entre les électrodes de ces lentilles, sans créer d'arc. On peut donc tolérer $\Phi_1 \simeq 50\,000$ volts. En outre, des expériences en cours, indiquent que la tenue en tension est bien meilleure si les différences de potentiel sont appliquées par impulsions de courte durée. C'est précisément ce qui aura lieu dans l'accélérateur.

Les valeurs nécessaires pour assurer la convergence sont donc très réalisables.

En outre, la faible valeur du taux d'oscillations résiduelles montre qu'il est possible d'allonger les lentilles. On peut par exemple monter une lentille sur deux tubes de glissement. Des calculs développés d'une façon analogue montrent qu'en première approximation les tensions Φ_1 nécessaires à la stabilité sont sensiblement divisées par deux.

Il est donc certain que l'emploi de lentilles électriques, alimentées par des potentiels statiques réalisables, permet d'assurer la stabilité latérales des accélérateurs linéaires d'ions.

En terminant, nous pouvons discuter rapidement le rôle des différents paramètres de la formule (5.15).

Prenons comme exemple un accélérateur dans lequel l'amplitude du champ accélérateur reste constante ($\nu = 1/2$).

On constate que Φ_1 est d'autant plus petit que K est plus faible. Il sera donc intéressant de prendre un appareil long, dans lequel le taux d'accroissement de l'énergie est faible.

Il est indiqué, aussi de prendre une valeur de f assez faible. Mais on est limité par les dimensions de la cavité résonnante qui alimente les coupures. Il semble difficile de prendre des ondes de fréquence inférieure à 10^8 hertz.

Enfin, il faut prendre une forme d'électrodes qui donne une constante caractéristique K_1 aussi grande que possible. Il semble avantageux de choisir des pièces circulaires, mais celles-ci tiennent moins bien la tension que les hyperboliques, et il semble préférable d'adopter cette dernière forme, qui donne, en outre des termes d'aberration moins élevés.

Lentilles magnétiques. — Les dimensions des pièces polaires sont les mêmes que celles des électrodes des lentilles du paragraphe précédent. Nous obtenons la valeur de la différence de potentiel magnétique à appliquer entre les pièces polaires, en comparant les formules donnant β et β'. Nous en déduisons le gradient de champ au voisi-

nage de l'axe. Dans les formules ci-dessous le gradient est exprimé en gauss par centimètre, unité qui est plus pratique que le weber/m²/m qu'exigerait l'emploi du système M. K. S. A. Nous avons :

$$\Delta\Psi = 70{,}7\,\frac{\Phi_1}{\sqrt{\Phi}}\ \text{gilbert}\quad \frac{B_Y}{y} = \frac{B_X}{x} = 70{,}7\,\frac{K_1}{a_{cm}^2}\,\frac{\Phi_{1\,\text{volt}}}{\sqrt{\Phi_{\text{volt}}}}\ \text{gauss/cm.}$$

Pour fixer les ordres de grandeur, considérons l'accélérateur à protons, de 1 à 4 MeV, correspondant à $\nu = 1/2$. On trouve, au début une différence de potentiel magnétique de 2 050 gilbert correspondant à un gradient de champ de 900 gauss/cm environ ; à la fin on a 1 400 gilbert et un gradient de champ de 620 gauss/cm. De tels gradients de champ magnétique sont très réalisables, comme on s'en rendra compte en examinant la courbe de la figure 13.

On peut également songer à l'utilisation d'aimants permanents ; la figure 17 donne la coupe d'une réalisation possible. Les parties hachurées représentent les aimants en acier et les parties non hachurées des armatures de fer doux, de perméabilité sensiblement infinie.

Une différence de potentiel magnétique de 2 050 gilberts dans un entrefer de 1 cm s'obtiendra avec des aimants de 7 cm de longueur,

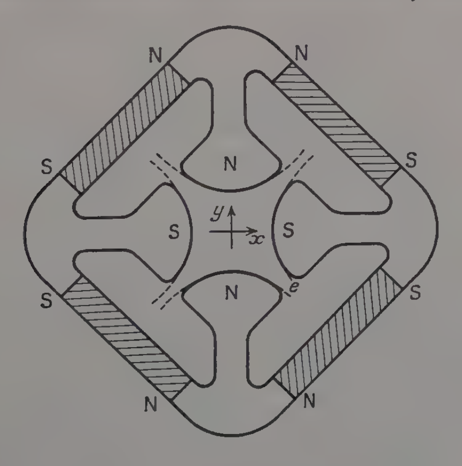


Fig. 17. — Coupe d'une lentille magnétique à forte convergence utilisant des aimants permanents.

fonctionnant au voisinage de leur point de fonctionnement optimum [1].

[1] Nous avons pris les caractéristiques d'un acier du type Alnico pour lequel $B_r = 9\,000$ gauss et $H_a = 600$ œrstedt.

De tels aimants assureront la stabilité latérale dans les accélérateurs linéaires, sans que l'on ait à se préoccuper d'entrée de tension, d'isolement, ou encore d'évacuation de chaleur produite par effet Joule.

CONCLUSION

Dans le premier chapitre de cette étude nous avons rappelé les principes essentiels d'une théorie simple décrivant le mouvement des ions dans l'accélérateur linéaire.

Nous choisissons une loi raisonnable pour décrire le mouvement longitudinal de la particule « type » dont la phase reste constante par rapport à l'onde accélératrice. Nous en déduisons l'expression du champ électrique qu'il faut réaliser pour que ce mouvement ait lieu. Ce procédé a l'avantage de donner des formules très simples pour décrire les phénomènes ; c'est pourquoi il permet de mener à son terme la théorie du mouvement des ions. De plus, il est possible d'évaluer numériquement les divers paramètres qui s'introduisent successivement, à partir des données essentielles telles que la longueur de l'appareil.

Dans un second chapitre, nous avons étudié le mouvement latéral des particules accélérées. Nous avons établi l'expression des forces transversales, qui montrent que les particules divergent toujours. Nous avons calculé les équations des trajectoires ; l'application numérique montre que, dans la plupart des cas, les particules s'écarteront de l'axe à un point tel qu'elles se perdront dans les parois.

Il apparaît donc indispensable d'étudier les dispositifs permettant d'assurer la stabilité latérale. Les lentilles classiques sont difficilement applicables, en particulier les lentilles magnétiques qui, pour être efficaces, nécessiteraient des champs dépassant les possibilités techniques. Par contre, des lentilles basées sur le principe nouveau, proposées récemment par Courant, Livingston et Snyder, semblent très indiquées pour la convergence des particules lourdes et rapides.

Nous avons donné dans le quatrième chapitre une étude complète de la répartition des champs focalisateurs créés par ces lentilles, tant dans leur version électrique que dans leur version magnétique. Nous avons étudié l'influence de la forme des électrodes, et calculé les perturbations apportées par les extrémités des lentilles.

Il nous a été alors possible, dans un dernier chapitre, de calculer la trajectoire d'un ion soumis à la fois à l'action défocalisante du champ accélérateur, et aux forces convergentes des lentilles.

L'expression de la matrice de transformation d'une lentille nous a conduit à une condition de stabilité latérale, pour que la section du faisceau de particules ne dépasse pas une certaine valeur.

Les potentiels électriques qu'il faut appliquer aux électrodes de lentilles pour que cette condition soit satisfaite ont un ordre de grandeur qui permet d'envisager leur réalisation pratique. Les lentilles magnétiques nécessaires sont également très réalisables.

Ces potentiels sont d'autant plus faibles que la vitesse de la particule est plus élevée ; on constate qu'un champ accélérateur dont l'amplitude croît avec l'abscisse donne des conditions de stabilité plus aisées à réaliser tout au moins au début de l'appareil.

En conclusion, il semble que l'on puisse envisager la construction d'un accélérateur linéaire portant les protons de 1 MV à quelques dizaines de MV. Le potentiel d'injection pourrait provenir d'un transformateur à impulsions, ce qui permettrait d'éviter la construction dispendieuse d'un appareil de Van der Graaff. En choisissant, au début, un champ accélérateur dont l'amplitude augmente, on pourrait stabiliser latéralement le faisceau sans rencontrer de trop grandes difficultés, pendant les premiers MV.

Puis une fois les particules suffisamment accélérées, pour être moins vulnérables à l'action des forces défocalisantes, on reviendrait à un champ d'amplitude constante, qui peut se réaliser sur une longueur aussi grande que l'on désire.

ANNEXE

Stabilité des trajectoires dans une succession de lentilles électroniques.

La linéarité des équations du mouvement latéral permet, comme nous l'avons fait, d'utiliser la notation matricielle pour passer des coordonnées x_0 et x'_0 de la trajectoire à l'entrée d'une lentille aux coordonnées à la sortie x_1 et x'_1. Nous avons :

$$(1) \qquad \begin{pmatrix} x_1 \\ x'_1 \end{pmatrix} = (\mathfrak{M}_{01}) \begin{pmatrix} x_0 \\ x'_0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} a & b \\ c & d \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x_0 \\ x'_0 \end{pmatrix}.$$

Une matrice analogue existe pour l'autre coordonnée y. Au premier ordre, les deux coordonnées ne sont pas couplées, et la stabilité s'étudiera sur chacune des matrices.

Considérons deux axes de coordonnées sur lesquels nous portons, en abscisse, x et en ordonnées x'.

Chaque point de la trajectoire est donc caractérisé par un vecteur $\vec{V}$ de composantes x et x'. Les deux directions propres de la matrice correspondent aux vecteurs $\vec{u}_1$ et $\vec{u}_2$. Nous pouvons décomposer le

vecteur $\overrightarrow{V_0}(x_0, x'_0)$ suivant les deux directions propres, ce qui nous donne :

$$\overrightarrow{V_0} = \alpha_0 \overrightarrow{u_1} + \beta_0 \overrightarrow{u_2}.$$

Après traversée de la lentille, le vecteur caractéristique de la trajectoire $\overrightarrow{V_1}(x_1, x'_1)$ est :

$$\overrightarrow{V_1} = \alpha_0 \overrightarrow{u_1} \lambda_1 + \beta_0 \overrightarrow{u_2} \lambda_2$$

λ_1 et λ_2 étant les valeurs propres de la matrice de transformation correspondant à chacunes des directions propres. L'équation aux valeurs propres s'écrit :

$$\lambda^2 - T\lambda + 1 = 0$$

T étant la trace de la matrice. Le déterminant est en effet égal à l'unité ; c'est une conséquence de la linéairité des équations du mouvement.

Il y a alors deux cas à considérer :

— $|T| > 2$. Posons $T = 2 \operatorname{ch} \varphi$. Les valeurs propres, réelles, sont :

$$\lambda_1 = e^{\varphi} \qquad \lambda_2 = e^{-\varphi}.$$

Le vecteur caractéristique de la trajectoire est donc, à la sortie :

$$V_1 = \alpha_0 e^{\varphi} . \overrightarrow{u_1} + \beta_0 e^{-\varphi} \overrightarrow{u_2}.$$

L'une des valeurs propres étant supérieures à l'unité, la particule s'écartera et ira se perdre dans la paroi *pourvu que cette condition* ($|T| > 2$) *reste vérifiée dans un nombre suffisant de lentilles consécutives.*

— $|T| < 2$. Posons alors $T = 2 \cos \Psi$. Les valeurs propres sont des nombres complexes de module unité :

$$\lambda_1 = e^{j\Psi} \qquad \lambda_2 = e^{-j\Psi}$$

A la sortie le vecteur s'écrit :

$$V_1 = \alpha_0 \overrightarrow{u'_1} + \beta_0 \overrightarrow{u'_2}$$

$\overrightarrow{u'_1}$ et $\overrightarrow{u'_2}$ étant déduits de $\overrightarrow{u_1}$ et $\overrightarrow{u_2}$ par des rotations de Ψ ou $-\Psi$, la valeur de $|\overrightarrow{V}|$ reste bornée. Il y aura donc stabilité, tant que cette condition sera vérifiée.

La condition de stabilité est donc $-2 < T < +2$. La condition limite $T = 2$ correspond aux potentiels d'alimentation les moins élevés. Nous avons montré que ces potentiels étaient parfaitement réalisables. Dans la pratique, il sera utile de prendre des potentiels

(ou des champs magnétiques), plus élevés de façon à assurer le stabilité des particules qui oscillent autour de la phase φ_s, et qui, de ce fait, sont soumises pendant une partie de leur trajet à un gradient défocalisant plus élevé.

(Travail effectué au Laboratoire de Radioélectricité de l'Ecole normale supérieure).

BIBLIOGRAPHIE

1. L. W. Alvarez. — *Phys. Rev.* et *U. C. R. L. Report*, 13 novembre 1948, **70**, 799.
2. J. S. Bell. — *Nature*, 1953, **171**, 167.
3. J. S. Bell. — *A. E. R. E. Reports*, T/M, 1954, **95**.
4. M. Y. Bernard. — *Comptes Rendus Ac. Sc.*, 1952, **234**, 1862 et 2175.
5. M. Y. Bernard. — *Journ. Phys. Rad.*, 1953, **14**, 381 et 451.
6. M. Y. Bernard. — *Comptes Rendus Ac. Sc.*, 1954, **238**, 675.
7. M. Y. Bernard. — *Journ. Phys. Rad.*, 1954, **15**, 121 A.
8. S. Bertram. — *Proc. Ins. Radio. Eng.*, 1940, **28**, 418.
9. S. Bertram. — *Journ. App. Phys.*, 1942, **13**, 496.
10. J. P. Blewett. — *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 1197.
11. H. Bradner, R. Crawford, H. Gordon, J. R. Woodyard. — *Phys. Rev.*, 1948, **73**, 533.
12. G. Breit. — *Bull. of Amer. Phys. Soc.*, 1954, **29**.
13. H. Cartan. — *Journ. Phys. Rad.*, 1937, **8**, 111.
14. Chick et Petrie. — *Nature*, 1951, **168**, 783.
15. E. L. Chu. — *Tech. Rep. Stanford Uni.*, n° 140, mai 1951.
16. E. D. Courant, M. S. Livingston, H. S. Snyder. — *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 1190.
17. D. Gabor. — *Nature*, 1947, **159**, 303.
18. R. L. Glukstern, P. B. Daitch, L. C. Biedenharn, M. H. Jr Hull. — *Bull. Amer. Phys. Soc.*, 1954, **29**.
19. P. Grivet. — *Advances in Electronics* II, New-York, 1950, 51 à 100.
20. M. H. Jr Hull, L. C. Biedenharn, P. B. Daitch, R. L. Gluckstern. — *Bull. Amer. Phys. Soc.*, 1954, **29**.
21. Jahnke et Emde. — *Tables of higher functions*, 4e édition, Teubner, Leipzig, 1948.
22. K. Johnsen. — *Chr. Michelsens Inst. Rep.*, XVI, 3, 1954.
23. Knoll et Weichart. — *Zeits. f. Phys.*, 1938, **110**, 233.
24. P. Lapostolle. — « Accélérateurs de particules ». Reunions d'études et de mise au point, sous la direction de Louis de Broglie. Publiées aux éditions de la *Revue d'Optique*, 1949.
25. Mc Intyre, Kyhl, W. H. Panofsky. — *Tech. Rep. Stanford Uni.*, n° 202, juill. 1953.
26. R. B. Néal. — *Tech. Rep. Stanford Uni.*, n° 185, fév. 1953.
27. F. Rabinovitch. — *Ann. Radioélec.*, 1945, **1**, 134.

28. Y. Rocard. — *Dynamiques des vibrations*, Masson 1949.
29. A. Sarazin. — *Ann. Radioélec.*, 1953, **8**, 134 et 228.
30. R. Serber. — *Phys. Rev.*, 1948, **73**, 533.
31. J. C. Slater. — *Rev. Mod. Phys.*, 1948, **20**, 463.
32. D. H. Sloan, E. D. Lawrence. — *Phys. Rev.*, 1934, **38**, 2021.
33. D. H. Sloan, W. M. Coates. — *Phys. Rev.*, 1934, **46**, 539.
34. J. Vastel. — *Ann. Radioélec.*, 1952, **6**, 20.
35. W. Walkinshaw. — Communication au C. E. R. N.
36. R. Wideröe. — *Arc. f. Elek.*, 1929, **21**, 387.

Depuis le dépôt du manuscrit, nous avons eu connaissance de trois autres articles concernant cette question :

P. Cork et Zacek. — *U. C. R. L.*, *T. R.* 2 182, 1953, Berkeley.
R. O. Ridley. — *A. E. R. E.*, T/M 103, 1954.
L. C. Teng. — *Rev. Sc. Inst.*, 1954, **25**, 264.

MICROSCOPIE CORPUSCULAIRE A L'AIDE D'IONS LITHIUM [1]

Par Maurice GAUZIT

INTRODUCTION

Le microscope électronique à transmission semble avoir atteint actuellement son stade ultime de perfectionnement ; l'avenir de son développement réside plus dans l'élargissement de son champ d'application que dans l'augmentation des grandissements réalisables par l'utilisation de techniques de plus en plus complexes.

Dans la première partie de ce travail nous indiquons les meilleurs résultats obtenus avec cet appareil, en soulignant le fait que le microscope électronique de conception actuelle est pratiquement arrivé à un stade voisin de son pouvoir de résolution maximum. Seule la focalisation d'un faisceau corpusculaire d'ions semble, en théorie du moins, offrir de grandes possibilités pour l'amélioration du pouvoir séparateur.

L'utilisation d'ions en microscopie s'est heurtée jusqu'ici à de grandes difficultés expérimentales et les recherches dans cette voie ont été très rares et plutôt décevantes.

Nous avons eu l'idée d'utiliser une source d'ions thermiques pour obtenir des images par transmission. Une telle source était très simple et de fonctionnement sûr ; de la même façon qu'elle avait parfois été utilisée lors du réglage d'un spectromètre de masse, elle semblait devoir faciliter les premiers essais de réglage d'un microscope ionique.

Pour les premiers travaux dans cette voie il nous a semblé utile de choisir des conditions expérimentales voisines de celles que nous utilisions avec les électrons. Malgré tout ce que nous promettait la théorie, nous n'espérions pas obtenir immédiatement des résultats supérieurs à ceux que donnent les électrons. A l'aide d'un microscope électronique industriel que nous avons adapté au fonctionnement ionique, nous avons pu obtenir avec des ions Li^+ ou des électrons des photographies de « fumées » présentant des pouvoirs séparateurs presque comparables.

(1) Thèse présentée, le 7 juillet 1953, à la Faculté des Sciences de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques.

I. — POUVOIR SÉPARATEUR EN MICROSCOPIE CORPUSCULAIRE

Au cours d'une première série de recherches (11) non présentées ici, nous avons pu obtenir des images ioniques à l'aide d'un microscope électrostatique à émission : nous observions l'image d'une surface émettant des ions alcalins (alumino-silicates complexes alcalins portés à 1 000°-1 200° C). A la suite de ces travaux nous avons eu l'idée d'utiliser la même source d'ions pour obtenir des images ioniques par transmission.

RÉSULTATS THÉORIQUES ESCOMPTÉS LORS DE L'UTILISATION DES IONS

La possibilité d'utilisation des ions à la place des électrons s'introduit lorsque l'on envisage les différentes conditions d'amélioration du pouvoir séparateur du microscope électronique (3) (27). On peut en effet montrer (14) (29) que le pouvoir séparateur optimum d'un microscope corpusculaire est déterminé par les deux aberrations de sphéricité et de diffraction : le réglage optimum s'obtient par un compromis entre ces deux aberrations. Le calcul donne comme pouvoir séparateur :

$$\rho_{\text{opt}} = K\lambda^{3/4}(C_s . f)^{1/4}$$

où K est une constante dont la valeur numérique est voisine de 1 et dépend de la méthode de calcul utilisée, λ la longueur d'onde de la radiation, C_s la constante d'aberration sphérique de l'objectif et f sa distance focale. Une application numérique aux meilleurs objectifs magnétiques et électrostatiques réalisés actuellement donne, dans le cas de l'utilisation des électrons, respectivement des pouvoirs séparateurs optima de 5 et 15 Å. Pratiquement on a obtenu 6 Å avec le microscope magnétique (25) et 20-25 Å avec le microscope électrostatique (4) (17). Le faible écart entre les valeurs théoriques limites et celles obtenues montre que le microscope électrostatique est arrivé actuellement au *voisinage de son développement optimum :* malgré de très nombreux efforts, le gain de finesse réalisé depuis une dizaine d'années n'a été que minime.

Une discussion classique (14) (26) montre que de grands gains peuvent être réalisés seulement en utilisant des ions à la place des électrons, la longueur d'onde associée à ces premiers étant une centaine de fois inférieure à celle de ces derniers. Si m est la masse de

l'ion utilisé, les gains en $m^{3/8}$ sont de 17 pour H^+, de 43 pour Li^+, de 105 pour Cs^+.

Indiquons qu'il faut obligatoirement utiliser avec les ions une lentille électrostatique, les lentilles magnétiques n'étant pas assez convergentes. Dans le premier cas les propriétés optiques de la lentille sont par contre identiques avec les ions ou les électrons, sa convergence étant indépendante de la charge et de la masse.

La figure 1 montre l'aberration de diffraction pour des électrons et des ions Li^+ de 50 kV ainsi que l'aberration de sphéricité pour un objectif ayant une constante d'aberration $C_s.f = 6$ cm. Les deux

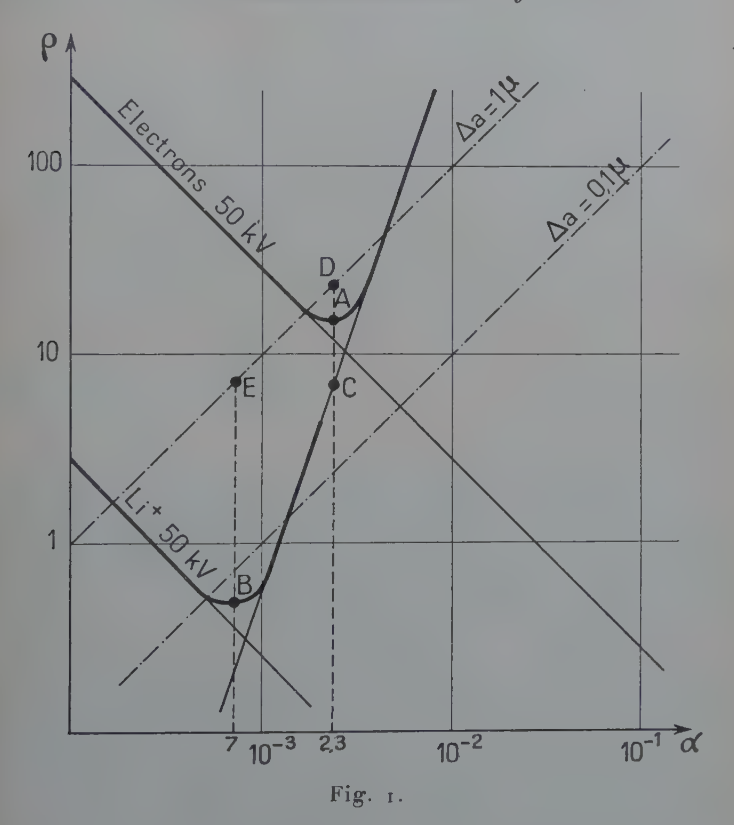


Fig. 1.

aberrations varient en sens contraire avec l'ouverture du faisceau. La composition de ces deux aberrations conduit à une courbe dont le minimum est arrondi, les ouvertures optima α_{opt} correspondant aux points A et B de la région où les deux défauts ont le même ordre de grandeur. On voit que l'ouverture optimum qui est avec les électrons

de $2{,}3 . 10^{-3}$, n'est plus avec les ions Li^+ que de $0{,}7 . 10^{-3}$. Le pouvoir séparateur optimum résultant est de 0,5 Å (point B).

La disposition de la figure 1 nous permet de faire deux remarques importantes. Tout d'abord, avec les ions, il est de peu d'utilité de rechercher un objectif corrigé de l'aberration de sphéricité. C'est ainsi qu'on peut montrer qu'un objectif ayant la même distance focale et une constante d'aberration sphérique dix fois plus grande que celle de l'objectif considéré conduira quand même à un pouvoir séparateur de 0,9 Å. Avec les ions la difficulté ne sera pas due aux qualités optiques de l'objectif, mais consistera à obtenir un faisceau corpusculaire de très faible ouverture.

Ceci nous conduit à la deuxième remarque, l'angle d'ouverture $\alpha_{opt} = 0{,}7 . 10^{-3}$ étant difficile à réaliser, nous voyons d'après la figure 1 qu'il n'est pas nécessaire *a priori* d'utiliser cette ouverture. Le simple fait d'employer une longueur d'onde beaucoup plus courte permet d'escompter d'un même appareil des résultats bien supérieurs, le pouvoir séparateur théorique n'étant plus alors limité que par l'aberration de sphéricité. C'est ainsi que le seul fait dans l'appareil considéré d'utiliser des ions Li^+ de 50 kV au lieu d'électrons remplace le point A par le point C, c'est-à-dire réduit le pouvoir séparateur d'optimum de 15 à 6,5 Å, l'angle d'ouverture ne variant pas.

LIMITATIONS DU MICROSCOPE IONIQUE

Les résultats que nous venons de voir ne sont que des prévisions théoriques, c'est-à-dire correspondent à un appareil fonctionnant dans des conditions idéales de réalisation et de réglage. Pratiquement les aberrations résiduelles d'origine mécanique ou électrique vont définir un pouvoir séparateur pratique :

$$\rho_{prat} \geqslant \rho_{opt}.$$

Il est difficile de prévoir quelle va être l'importance relative des diverses aberrations qui interviennent alors (aberration chromatique, dispersion des vitesses après la traversée de l'objet, charge d'espace...). Une aberration semble avoir une importance primordiale, il s'agit de celle *d'ellipticité :*

$$\rho = \alpha . \Delta a$$

où α est l'ouverture du faisceau et Δa la variation extrême du diamètre du diaphragme central de l'objectif. Cette aberration est tracée (fig. 1) pour les deux valeurs 1 et 0,1 μ de Δa. Les objectifs réalisés actuellement ayant une excentricité voisine de 1 μ nous voyons sur

cette figure que c'est pratiquement cette aberration qui va limiter dans le cas des ions le pouvoir de résolution pratique. En effet, avec un angle d'ouverture de $2{,}3 . 10^{-3}$ ce n'est plus le point C que l'on doit considérer mais le point D. Le pouvoir séparateur résultant est de 23 Å (au lieu de 6,5). Au réglage optimum avec les ions correspond le point E qui indique un pouvoir séparateur de 7 Å (au lieu de 0,5).

Il serait possible de diminuer cette aberration d'ellipticité en utilisant un *système stigmateur* qui compense électrostatiquement l'ellipticité du faisceau. Mais il est difficile de prévoir si cet appareil pourra être utilisé avec les ions; son réglage déjà délicat avec les électrons nécessite une grande luminosité de l'écran et exige la présence de franges de diffraction sur le pourtour des images. Une autre possibilité consisterait à réaliser une ellipticité voisine de 0,1 μ, ce qui est difficile à réaliser mécaniquement ; on se trouverait alors dans des conditions analogues à celles réalisées lors de l'utilisation des électrons, où pour un angle voisin de l'ouverture optimum, les trois aberrations sont du même ordre de grandeur.

II. — DESCRIPTION DU MICROSCOPE

CARACTÉRISTIQUES OPTIQUES ET MÉCANIQUES

Nous avons utilisé un *microscope électrostatique* CSF type M IV (16). C'est un appareil à deux lentilles. Son grandissement maximum est de 12 500. La haute tension varie de 0 à 55 000 volts. L'objectif, qui a une distance focale de 6,5 mm., donne une image intermédiaire à un grandissement de 50 sur un écran auxiliaire, ce qui facilite les réglages. Sa constante d'aberration sphérique est $C_s = 12$; on en déduit d'après la figure 1, *un pouvoir séparateur théorique optimum* de 16,7 Å pour des électrons de 50 kV. Le projecteur a une distance focale minimum de 2,1 mm. à laquelle correspond un grandissement maximum de 250.

Nous n'avons pas utilisé le diaphragme d'ouverture de $5 . 10^{-2}$ mm. de diamètre dont est généralement muni l'appareil. Avec les ions son emploi est pratiquement impossible, car il est très rapidement pollué à la fois par les ions qui le heurtent et s'y condensent et par les fragments de l'objet arrachés par le bombardement ionique qui viennent s'y déposer.

Le fait d'enlever ce diaphragme diminue considérablement le contraste de l'image en fonctionnement avec des électrons, mais a par contre très peu d'influence en microscopie ionique, car nous

n'avons jusqu'à présent observé que des « effets de bord », tous les objets étant absolument opaques aux ions utilisés. Au cours de cette étude nous verrons que sa présence aurait cependant contribué à augmenter le contraste, non par suppression des faisceaux diffractés du premier ordre, mais en empêchant la propagation de la « tache centrale » et de certains faisceaux « parasites ». Pour la même raison il serait aussi utile de placer un deuxième diaphragme sous le projecteur.

L'ouverture du faisceau était celle fournie par le canon de Bruck (6) monté sur cet appareil, $\alpha = 1{,}9 \cdot 10^{-3}$. Quelques essais ont aussi été effectués avec une ouverture de $1{,}2 \cdot 10^{-3}$. L'ouverture optimum de cet objectif est pour des électrons de 50 kV de $2{,}2 \cdot 10^{-3}$ et pour des ions Li^+ de 50 kV de $0{,}7 \cdot 10^{-3}$.

Remarquons que dans ce dernier cas, avec l'ouverture utilisée de $1{,}9 \cdot 10^{-3}$, le pouvoir de résolution théorique correspondant est d'après la figure 1 de 5,5 Å environ.

Le trou central de l'objectif avait une ellipticité inférieure à 1 μ. La limite supérieure de résolution correspondant à cette aberration est :

$$\delta_\varepsilon = \alpha \cdot \Delta a = 19 \text{ Å}.$$

On voit l'influence prépondérante de cette aberration ; mais il était inutile pour une des premières études sur la microscopie ionique à fort grandissement de chercher à corriger ce défaut (ellipticité inférieure des diaphragmes — correcteur d'astigmatisme). Le premier stade des recherches consistait tout d'abord à obtenir une qualité d'image ionique comparable à celle obtenue avec les électrons. Certains défauts propres à la microscopie ionique se sont révélés beaucoup plus gênants que cette aberration d'ellipticité.

RÉSULTATS OBTENUS AVEC LES ÉLECTRONS

Nous avons tout d'abord fait subir à l'appareil quelques modifications en vue de disposer d'un microscope électronique réglé de façon satisfaisante et *fonctionnant avec une très bonne régularité.* Cette dernière qualité est apparue très utile par la suite : lors de l'utilisation des ions, les difficultés expérimentales étant nombreuses un fonctionnement régulier de l'appareil, au point de vue optique et électrique, était absolument nécessaire.

Nous avons mesuré le pouvoir séparateur par la méthode de Von Ardenne (33), qui consiste à étudier la *variation d'intensité sur une arête rectiligne :* un microphotomètre enregistreur permet d'ob-

tenir la courbe densitométrique de la répartition de la lumière correspondant à la zone de transition, image de l'arête.

On peut calculer (15) que le pouvoir séparateur est égal à environ 1,1 fois la distance latérale, ramenée à l'objet, séparant les points de la courbe situés à 15 o/o et 85 o/o de la différence totale d'intensité entre l'intérieur et l'extérieur de la particule (fig. 2). On peut aussi le

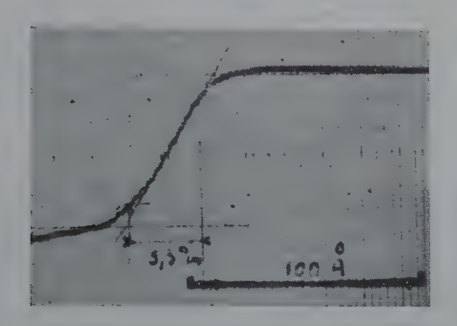


Fig. 2.

mesurer à partir de la pente p de la tangente d'inflexion de la courbe :

$$\rho = 0{,}95/p.$$

De toute façon même si cette méthode ne donne pas rigoureusement le pouvoir de résolution de l'image, la valeur qu'on obient ainsi est en relation directe avec cette résolution ; elle permet de comparer très facilement deux réglages. C'est là son avantage pour cette étude. En outre, les photographies ioniques réalisées jusqu'ici étant uniquement des « effets de bord » cette méthode fut *la seule utilisable dans ce cas.*

La courbe, figure 2, correspond à un enregistrement effectué sur un des meilleurs négatifs électroniques obtenus avec des cristaux d'oxyde de molybdène. L'enregistrement a été réalisé avec un microphotomètre Chalonge muni d'une lampe électromètre avec une fente de 0,02 mm. de large et 4 mm. de haut.

Le pouvoir séparateur pratique déduit d'une série de plusieurs mesures sur divers négatifs de cristaux d'oxyde de molybdène est voisin de 35 Å, comme on peut le voir sur l'enregistrement représenté figure 2 où le grandissement total est de 3.10^6 (grandissement électronique = 12 500, grandissement mécanique du microphotomètre = 240).

TRANSFORMATION EN MICROSCOPE IONIQUE

La transformation du microscope électronique classique en microscope ionique fut très simple. Elle consista essentiellement à remplacer la source d'électrons habituellement utilisée par une source thermique d'ions alcalins.

Nous voyons immédiatement l'avantage de cette méthode qui permet d'obtenir *successivement* par un simple changement de la polarité de la haute tension, et sans même avoir à ouvrir l'appareil, des images électroniques et ioniques de la même région.

La *haute tension positive* a été obtenue en inversant la polarité de la cuve qui équipait l'appareil. C'est un montage doubleur de tension à transformateur fonctionnant sous 600 périodes. Nous disposions ainsi d'une tension variable entre 20 et 60 kV possédant une ondulation résiduelle absolument négligeable avec les ions. Cette source de tension s'est révélée par la suite particulièrement bien adaptée à son usage. Elle est en effet, après quelques minutes de fonctionnement, suffisamment constante au cours du temps pour permettre les poses de plusieurs dizaines de secondes que nécessite la microscopie ionique à fort grossissement.

Signalons que les décharges disruptives entre les lentilles électrostatiques se produisent à une tension plus élevée lorsque l'électrode centrale est chargée positivement; alors que la tension maxima compatible avec un bon fonctionnement est de 40 kV environ pour les électrons, il est possible de fonctionner avec les ions à plus de 50 kV.

III. — SOURCE D'IONS

Pour la microscopie ionique, le problème de la source d'ions présentait des exigences tout à fait strictes d'intensité et de géométrie. Alors que sur un fil de tungstène ou une cathode à oxydes la zone émissive est nettement délimitée en surface, les ions sont en général extraits d'un plasma à trois dimensions. Il est par suite beaucoup plus difficile d'en obtenir un faisceau étroit d'ions. La répartition des vitesses initiales est en outre beaucoup plus grande avec ces ions qu'avec les électrons thermoélectriques et il se forme aussi, à côté de l'ion principal, des ions de natures différentes ainsi que des ions moléculaires qui prendront sous l'effet du champ électrique accélérateur des vitesses différentes.

TRAVAUX ANTÉRIEURS

L'idée d'utiliser des ions à la place des électrons dans un microscope a été signalée en 1932 par Knoll et Ruska (23). Les essais d'utilisation des ions en microscopie par transmission sont jusqu'ici très rares. En 1936, Koch et Walcher (22) obtinrent les premiers résultats qui ne furent guère encourageants : ils formaient l'image d'une grille avec un pouvoir séparateur de 1 mm. Le problème a été repris en 1942 par Boersch (3) (5) avec des moyens bien supérieurs. Il disposait d'un appareil fonctionnant parfaitement bien avec les électrons, lui donnant avec ceux-ci un pouvoir séparateur de 28 Å. Il inversa la polarité de la source de tension et utilisa une source de Li^+ du type Kunsman. L'intensité de celle-ci était cependant trop faible pour qu'il puisse obtenir une *image visible* sur l'écran. Il était obligé d'effectuer un réglage préliminaire avec des électrons. Ses photographies étaient prises à un grandissement direct de 1 000-2 000, mais avec des poses de 5-10 minutes il obtenait des clichés fortement sous-exposés. Les photographies d'oxyde de zinc présentées correspondent à une résolution d'environ 500-800 Å. Mais après quelques essais, Boersch devant les difficultés expérimentales cessa toute recherche et il affirma en conclusion de ses travaux que l'avenir était non pas vers l'utilisation des ions, mais vers le perfectionnement du microscope électronique.

Peu après, Magnan et ses collaborateurs (26) (27) s'attaquèrent d'une façon plus systématique à la question en montrant l'intérêt qu'il y avait à utiliser des protons et une haute tension de 300 000 volts. Ils ont conçu un microscope adapté à ce nouveau mode de fonctionnement, mais dont la réalisation et le réglage ont été très délicats. Les résultats obtenus ne sont pas connus, mais récemment des photographies correspondant à un grandissement utile de 3 000 ont été publiées (8), la tension de fonctionnement étant de l'ordre de 50 kV.

SOURCES D'IONS THERMIQUES

Pour effectuer les premiers essais d'utilisation des ions en microscopie, il fallait disposer d'une source qui ne présente aucun des inconvénients que l'on trouve dans les sources d'ions gazeuses généralement utilisées et qui soit en outre suffisamment intense, d'un réglage facile et d'un fonctionnement régulier. Une source d'ions par effet thermique semblait présenter toutes ces qualités, sauf peut-être une, les ions émis étaient alcalins et ces ions traversent encore plus difficilement la matière que les protons. Mais cet inconvénient est de

peu d'importance car on ne sait pas encore tailler d'objets assez minces pour être transparents aux protons : la microscopie ionique ne peut donc donner que des noirs et des blancs.

Richardson (30) avait découvert en 1916 que lorsqu'on chauffe des sels alcalins sur une spirale de tungstène, il y a émission d'ions. Des études ultérieures permirent d'obtenir ainsi, en chauffant certains sels métalliques, des sources d'ions très intenses et ne dégageant pratiquement aucun gaz. On distingue actuellement deux sources de ce type, correspondant probablement à deux phénomènes d'émission différents.

— Il y a, d'une part, *les sources de Kunsman* (24) perfectionnées par Koch (21) et Walcher (34). Elles se composent de poudre de tungstène aggloméré imprégné de chlorure alcalin ; par simple chauffage, après une période de « formation », on obtient une émission constante à la fois dans le temps et dans la nature de l'émission. Les courants obtenus peuvent atteindre 0,5 mA/cm^2. Il semble que l'émission soit due à l'effet Langmuir-Kingdom : les atomes alcalins adsorbés dans le support de tungstène sont volatilisés à la température de fonctionnement et s'ionisent au contact des cristaux de tungstène.

— L'autre type de sources solides à grande émissivité est fournie par divers verres et plus particulièrement les *alumino-silicates alcalins*. Mentionnées pour la première fois en 1927 par Huntley (19), elles ont été utilisées par Bainbridge (1) pour l'étude des isotopes du lithium, du sodium et du potassium. Cet auteur employait des corps naturels : spodumène Li_2O, Al_2O_3, $4SiO_2$ pour le lithium, jadéite pour le sodium et leucite pour le potassium. Peu après Blewett et Jones (2) montrèrent à la suite d'une étude systématique portant sur sept compositions différentes du lithium que la forme Li_2O, Al_2O_3, $2SiO_2$ (β-eueryptite) était la plus favorable. Cette source fournit sans aucune activation une émission très pure pouvant dépasser 1 mA/cm^2. Le phénomène de l'émission n'est pas connu mais il semble être plus proche de l'émission des électrons par les corps portés à haute température que de l'effet Langmuir-Kingdom. Récemment Couchet (10) continua l'étude de ces sources ; il mit au point une méthode de préparation synthétique à l'état de grande pureté chimique.

Les premiers essais de microscopie ionique, ceux de Boersch (5) eurent lieu à l'aide d'une source de Kunsman-Koch. Mais cette source présentait le double inconvénient de nécessiter une activation préalable et de n'avoir qu'une durée de vie très courte, à peine suffisante pour deux ou trois photographies. L'intensité obtenue n'était pas non plus suffisante.

Nous avons utilisé dans le travail présenté ici une source du deuxième type, réalisée à l'aide de produits préparés par G. Couchet. Cette source présente tous les avantages de celle employée par Boersch et allie une plus grande simplicité à une émissivité supérieure.

Remarquons que l'utilisation de ces sources solides, d'un type aussi bien que de l'autre, n'entraîne que des *modifications très*

légères dans le canon classique d'un microscope. Ce sont là des sources idéales pour dégrossir la solution des problèmes qui se posent quand on passe de l'utilisation des ions à celle des électrons. Ces sources émettent en effet à la fois des ions et des électrons ; il est très facile par inversion et modification de certaines tensions de comparer deux images obtenues successivement avec les corpuscules des deux signes. Cette propriété avait déjà été utilisée lors de la première série de recherches que nous avions faites en microscopie par émission à l'aide des alumino-silicates alcalins (11).

BOULE A L'EXTRÉMITÉ D'UN FILAMENT

Après quelques essais infructueux sur un montage (petit fourneau) analogue à celui décrit par Boersch (5), nous avons utilisé un montage plus simple : un filament ordinaire du microscope à l'extrémité inférieure duquel nous formions une petite boule de verre émissif (13). On obtient ainsi une émission suffisante pour des intensités de chauffage analogues à celles utilisées lors du fonctionnement en électrons. Cette source qui modifie au minimum les conditions géométriques à l'intérieur du canon est de plus extrêmement facile à construire.

Préparation. — Nous avons utilisé un filament de tungstène de 9/100 de millimètre. La longueur totale du fil est de 16 mm. Il est plié en épingle à cheveux. L'aluminosilicate obtenu sous forme de verre est utilisé réduit en poudre très fine (maille 250). Pour former la boule à l'extrémité du filament la technique utilisée consiste à humidifier légèrement la poudre et à former ensuite une petite boule de cette pâte à l'extrémité du fil. Le diamètre de cette boule est de 2 mm. environ. Après avoir laissé sécher à l'air libre, un chauffage graduel dans le vide du microscope pendant quelques secondes avant de brancher la tension permet au produit de se vitrifier.

La durée de vie de ces filaments est assez irrégulière, dans les plus mauvaises conditions seulement quelques minutes, dans les meilleures 3 à 4 heures, sans qu'il soit permis de trouver les raisons de ces grandes différences. La rupture du filament a lieu par attaque du fil de tungstène dans la partie qui est en contact avec le verre porté à haute température. Une durée de vie plus longue et plus régulière a pu être obtenue en platinant l'extrémité du fil de tunsgtène, ce qui diminue l'action corrosive du verre.

Le simple remplacement de l'ancien filament de tungstène utilisé lors du fonctionnement en électrons, par ce nouveau filament muni d'une boule n'ayant donné, lors des premiers essais, qu'un faisceau de faible intensité, une *étude systématique* des propriétés focalisatrices du canon était nécessaire.

Caractéristiques de l'émission. — Une recherche préliminaire consistait à suivre l'émission d'un de ces nouveaux filaments en fonction de la durée de fonctionnement dans le but de trouver les conditions expérimentales fournissant une émission constante avec le temps.

Bainbridge (1), Oliphant (28) avaient indiqué que par un chauffage préalable sous vide à une température supérieure à la température d'utilisation, on obtenait une activation pour laquelle l'intensité augmentait brusquement. Bainbridge indiquait même que sans ce traitement préalable il était difficile d'obtenir une émission constante et que le rendement de la source était alors mauvais. Aucune température n'avait été indiquée dans ces divers travaux.

Les essais que nous avons effectués n'ont pas confirmé ces résultats. Il semble qu'il n'y ait *aucun phénomène d'activation*, tout au plus un léger empoisonnement dans certains cas après une entrée d'air. Si au début, lorsqu'on augmente l'intensité de chauffage, on observe une apparition brusque de l'émission, faisant croire à une activation superficielle, ceci est uniquement dû à la grande masse calorifique de la perle de verre qui nécessite un certain temps pour se mettre en équilibre thermique avec le fil de tungstène porté à plus haute température.

Nous avons étudié l'évolution en fonction du temps de plusieurs sources de Li^+, le verre émissif étant maintenu à une température de couleur constante. Les constatations les plus importantes que nous avons pu faire sont :

1° On observe une *diminution lente de l'émission* au cours du temps, surtout très marquée pendant les 30 premières minutes et aussi dans la période qui précède la rupture du filament. On a par contre généralement, dans la partie intermédiaire une émission qui diminue d'une façon régulière d'environ 10 o/o de sa valeur par heure de fonctionnement.

2° Pour rester à une température constante de fonctionnement, comme la résistance du filament de tungstène augmente constamment (évaporation, dissolution dans le verre) il est nécessaire de diminuer régulièrement l'intensité de courant de chauffage. La variation très lente au début s'accélère dans le dernier tiers du fonctionnement probablement parce que, alors, la couche de platine ne protège plus le tungstène.

3° Au début, on observe toujours une *émission plus intense*, environ double de la valeur normale que l'on obtiendra par la suite. Des études parallèles au spectrographe de masse ont montré que cette augmentation de l'émission est la conséquence de l'évaporation en grande quantité d'ions sodium et potassium contenus comme impuretés dans le verre et dont le travail d'ionisation est plus faible que celui du lithium.

4° *Une entrée d'air* n'affecte pratiquement pas la valeur de l'émission que l'on peut obtenir après avoir réalisé à nouveau le vide dans l'enceinte. S'il se produit parfois après une entrée d'air une diminution de l'émission, cette dernière a toujours repris sa valeur primitive après quelques minutes de fonctionnement.

5° D'après les dimensions de la boule, on obtient une émissivité d'environ 0,2 mA/cm² à 1 055°. En fonctionnant à des températures supérieures à celle de fusion on peut obtenir des émissivités bien plus considérables, s'élevant jusqu'à 2,5 mA/cm² ; mais dans ces conditions le filament de tungstène est rapidement détruit.

6° Nous avons aussi effectué une étude rapide de l'émission en fonction de *la tension d'accélération* et de *la température*. Nous avons trouvé que la relation empirique :

$$i = kV^{1/4}$$

représentait bien la loi de variation du courant en fonction de la tension pour les régimes non limités par la charge d'espace. En fonction de la température, les mesures peuvent être représentées par une loi identique à celle de Richardson pour les électrons. Nous avons aussi montré par des variations rapides de la température que le mécanisme d'émission des ions semblait être déterminé par la vitesse de diffusion des ions à l'intérieur du réseau cristallin et non par la valeur du potentiel d'extraction.

PROPRIÉTÉS FOCALISATRICES DU CANON

Après inversion de la haute tension, le simple remplacement de l'ancien filament de tungstène utilisé en microscopie électronique, par le nouveau filament muni à son extrémité d'une boule, n'avait pas permis d'obtenir un faisceau ionique intense. Pour certains réglages de la hauteur et du centrage du filament par rapport au wehnelt, on n'obtenait aucun débit ionique. Pour d'autres, au contraire, il était possible d'obtenir un débit très élevé, mais dont une grande partie était arrêtée par l'anode, ce qui fournissait une intensité spécifique très faible sur l'objet. Si l'on augmentait la polarisation du wehnelt pour essayer d'obtenir un faisceau plus fin, celui-ci s'interrompait brusquement.

La première image ionique que nous avons pu obtenir a été prise dans des conditions analogues à celles de Boersch, à un grandissement direct de 4 000 avec une pose de 10 minutes. Le pouvoir séparateur est voisin de 1 000 Å.

Devant cette impossibilité d'utiliser le canon à électrons classique monté sur le microscope nous avons alors décidé d'entreprendre une

étude systématique de celui-ci pour déterminer l'influence des différents paramètres.

En microscopie ionique, comme en microscopie électronique, le réglage du canon doit satisfaire à plusieurs conditions délicates à réaliser et souvent contradictoires. On cherche à obtenir un spot fin, c'est-à-dire un faisceau de diamètre faible ; mais la brillance de ce spot doit être suffisamment intense pour permettre des temps de pose courts. Il faut d'autre part que le réglage soit *stable dans le temps* car la moindre fluctuation du débit du canon a des répercussions sur la haute tension et par suite sur la netteté de l'image. L'expérience montre que les réglages les plus stables sont ceux pour lesquels le *débit total est le plus faible*.

Montage électrique réalisé. — Le canon utilisé sur le microscope CSF type M IV, est celui de Bricka et Bruck (6).

Les mesures ont porté sur une certaine gamme de valeurs des paramètres géométriques, sur les courants, l'ouverture angulaire du faisceau. Mais la multiplicité des paramètres nous a conduit à en fixer un certain nombre. Les mesures ont été effectuées en fonction de quatre paramètres principaux :

— la hauteur du filament par rapport au wehnelt ;
— la polarisation du wehnelt par rapport au filament ;
— le diamètre du diaphragme du wehnelt ;
— la distance anode-wehnelt.

Ces mesures ont été réalisées dans le corps du microscope lui-même, après avoir enlevé les deux lentilles. Le montage représenté figure 3 comprend :

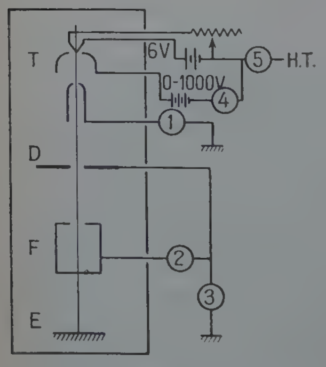


Fig. 3.

— *la tête* T du microscope qui comporte toutes les parties du canon : source, wehnelt et anode accélératrice. Le filament est ajustable en hauteur pendant le fonctionnement, mais ce paramètre n'est pas mesurable. Il est aussi possible de le centrer par rapport au wehnelt en cours de fonctionnement. L'ensemble du canon est muni d'un dispositif qui permet, pendant le fonctionnement, de déplacer le spot dans deux directions perpendiculaires et de l'incliner dans deux azimuts orthogonaux ;

— un écran qui remplace l'objet, muni en son centre d'un *diaphragme* D qui sert à isoler une partie du faisceau de dimensions analogues à celle éclairant normalement l'objet ;

— *un cylindre de Faraday* F permettant de mesurer l'intensité du faisceau ayant traversé le diaphragme D.

— Il est possible d'escamoter en marche le cylindre de Faraday et de recevoir ainsi le faisceau sur un écran fluorescent ou une plaque photographique.

— Le montage électrique comprend cinq microampèremètres ou galvanomètres qui permettent de mesurer les courants i_1 sur l'anode, i_2 dans le cylindre de Faraday, i_3 sur l'écran D, i_4 sur le wehnelt, i_5 débité par la haute tension.

Toutes les mesures ont été réalisées avec une H. T. de 45 kV. Les premiers essais (13) effectués avec une *polarisation variable du wehnelt obtenue par piles* (0-1 000 V) ont conduit à un échec, le comportement du canon étant dans ces conditions souvent inexplicable. C'est ainsi, en particulier, qu'il est impossible d'obtenir le pinceau d'ions si l'on fait varier la polarisation en augmentant la valeur de la tension à partir de zéro volt. On ne l'obtient qu'en faisant décroître très lentement la polarisation du wehnelt à partir de sa valeur maximum, le faisceau apparaissant alors brusquement pour une tension déterminée. Il est probable que la résistance interne élevée des piles, alliée à la présence d'un grand nombre d'électrons dans le canon (attirés par le wehnelt) soit à l'origine de ces phénomènes parasites.

Par la suite nous avons utilisé une *polarisation automatique* obtenue par la chute de potentiel dans une résistance variable (50 plots de 2 MΩ chacun) connectée en série avec la source de tension. Tous les résultats présentés plus loin ont été obtenus avec cette polarisation automatique. Mais il est difficile dans ce cas de connaître, même avec une faible précision, la tension entre le filament et le wehnelt : on connaît la valeur exacte de la résistance de polarisation mais on ne peut mesurer avec précision le débit dans cette résistance (au maximum 10 μA) car l'appareil 4, porté à la haute tension, est soumis à de fréquentes décharges consécutives à des claquages.

Résultats. — Il est nécessaire tout d'abord d'indiquer que ces mesures sont relativement complexes, aussi bien à conduire qu'à interpréter. En effet, à côté du *nombre élevé des paramètres*, difficulté que l'on retrouve aussi lors de l'étude d'un canon à électrons, ce nouveau canon présente des *particularités de fonctionnement* propres à l'utilisation des ions, ce qui rend son étude délicate.

Il se produit tout d'abord partout où les ions heurtent un obstacle une intense émission secondaire et tout le long du faisceau un grand nombre d'électrons dus à l'ionisation du gaz résiduel, ce qui fausse considérablement les mesures, le courant mesuré étant plus intense que le faisceau d'ions incidents. D'autre part, l'émission de la source d'ions de Couchet n'est pas suffisamment constante au cours du temps pour que l'on puisse prétendre à des mesures précises. Ce n'est qu'à la suite de plusieurs séries de mesures avec des filaments différents que l'on peut tirer une conclusion. Il faut aussi remarquer, lors de l'interprétation, que deux filaments en apparence identiques, portés à des températures semblables peuvent avoir une émission différant du simple au double. Nous sommes loin de la constance du filament de tungstène.

Une autre difficulté provient de ce que notre source émet des particules de polarités opposées. Le silicate émet des ions et des électrons. De plus le fil de tungstène qui sert à chauffer le globule de verre est porté à une température suffisante (de l'ordre de 1 400 à 1 700° C) pour avoir une émission électronique non négligeable. On voit ainsi la complexité de fonctionnement de ce canon où sont présents : des ions repoussés par le wehnelt et attirés par l'anode et des électrons qui au contraire sont attirés par le wehnelt. Les réglages ne sont obtenus que pour *un équilibre entre deux modes de fonctionnement*, canon à ions ou diode à électrons. Dans certaines conditions, principalement avec une polarisation par piles, cet équilibre est instable, le fonctionnement ayant lieu alternativement avec des particules négatives ou positives, la fréquence étant comprise entre une et plusieurs dizaines de secondes.

La figure 4 montre *l'influence du diamètre du diaphragme* du wehnelt sur le courant éclairant l'objet (courant i_2). Il s'agit de la valeur correspondant à l'optimum, pour les meilleurs réglages de la hauteur du filament, du centrage de celui-ci, de la résistance de polarisation. La courbe présente un maximum pour un diamètre compris entre 2,5 et 3 mm.

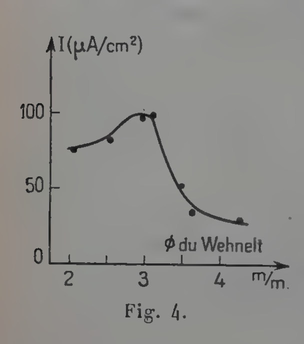


Fig. 4.

On comprend pourquoi le wehnelt utilisé avec les électrons, ayant un trou de 4,2 mm. de diamètre, n'a pas fourni des résultats satisfaisants. Par la suite nous avons utilisé indifféremment les wehnelts de 2,5 ou 3 mm. de diamètre. Pour ceux-ci la densité de courant maximum sur l'objet était légèrement inférieure à 100 µA/cm². Il est intéressant de comparer ce résultat où l'on a 100 µA/cm² dans les meilleures conditions (30 µA généralement) pour une émission totale de 8 µA, à ceux obtenus par Bricka et Bruck qui, avec 40 µA d'électrons, ont une densité supérieure à 2.10^4 µA/cm². Nous voyons que les résultats présentés ici pour les ions sont inférieurs à ceux obtenus par ces auteurs dans un rapport de 1 à 100.

Nous avons étudié *l'influence de la résistance de polarisation* sur le courant éclairant l'objet pour les différents diamètres de wehnelts, la hauteur du filament étant chaque fois réglée de façon optimum. La figure 5 montre une série typique ainsi obtenue.

Pour les petites valeurs de la résistance de polarisation l'intensité est faible, d'autant plus faible que le diamètre du wehnelt est plus petit. Le faisceau est alors constitué d'un cône creux très largement ouvert, au centre duquel se trouve un pinceau plus fin. C'est ce dernier seul qui éclaire l'objet. Lorsqu'on augmente la résistance R, le cône creux diminue d'ouverture et à partir d'une certaine valeur une partie des rayons le constituant commence à tomber sur l'objet : le courant utile commence à croître. Si l'on continue à augmenter R, ce courant augmente ainsi jusqu'à un maximum, très marqué pour les faibles diamètres du wehnelt, très aplati au contraire pour les diamètres élevés.

En augmentant encore la résistance de polarisation on arrive alors au cut-off pour lequel l'émission cesse, de moins en moins brusquement au fur et à mesure que le diamètre augmente.

Le *débit total du canon* (courant de fuite déduit) est aussi une qualité intéressante à connaître car l'expérience montre qu'il a une grande

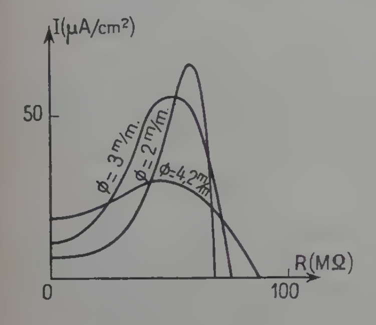


Fig. 5.

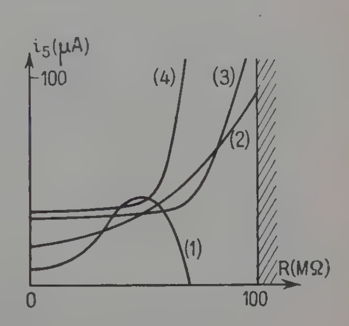


Fig. 6.

influence sur la qualité des images. La figure 6 montre les variations du débit du canon en fonction de la résistance de polarisation pour quatre hauteurs différentes du filament par rapport au wehnelt. On voit que pour les filaments pénétrant suffisamment dans le wehnelt, et donnant alors des courants utiles intenses, le débit de la haute tension augmente brusquement pour une valeur critique de la résistance et dépasse une intensité de 100 μA. Pour les valeurs plus élevées de la résistance, où l'on n'a plus aucun courant sur l'objet (cut-off) *on continue cependant à avoir un débit très élevé de la haute tension*. Ce comportement du canon est difficile à expliquer. S'agit-il d'une émission secondaire intense ou d'un fonctionnement en diode électronique entre le filament et le wehnelt positif ? Cette étude rapide ne nous a pas permis d'en décider. Il est évident que nous n'avons pas ici un phénomène de cut-off analogue à celui qui se produit dans un canon à électrons, pour lequel le débit de la haute tension cesse en même temps que le courant sur l'objet.

De plus, lors du passage au cut-off, l'augmentation du débit du canon est souvent extrêmement rapide, l'aiguille du microampèremètre 5 (voir fig. 3) butant brusquement à l'extrémité du cadran. A cette augmentation brusque d'un des courants ne correspond aucune discontinuité dans les courants mesurés par les autres appareils.

De toute façon, ce qui est intéressant au point de vue expérimental, c'est que l'on puisse obtenir un faisceau stable d'intensité suffisante. Avec un wehnelt de diamètre convenable, le réglage à effectuer consiste à trouver la hauteur et le centrage du filament par rapport au wehnelt pour lesquels on a *le débit maximum sur l'objet* sans avoir un *débit trop élevé de la haute tension*. On obtient ainsi dans les meilleures conditions un

réglage analogue à celui de la figure 7 où sont superposées les variations du débit de la haute tension et de la densité du courant utile sur l'objet en fonction de la résistance de polarisation. Dans le cas considéré l'intensité maximum sur l'objet correspond à un débit de 30 μA pour la haute tension.

L'ouverture du faisceau est voisine de 2.10^{-3}, soit environ le double de celle trouvée pour les électrons (6). Pour les fortes intensités l'ouverture du faisceau semble être plus élevée, mais ne peut être mesurée avec précision, l'ombre sur l'écran n'ayant pas de limites nettes.

En dernier lieu nous avons effectué quelques essais pour étudier *l'influence de la distance wehnelt-anode* sur le débit du canon. Ces expé-

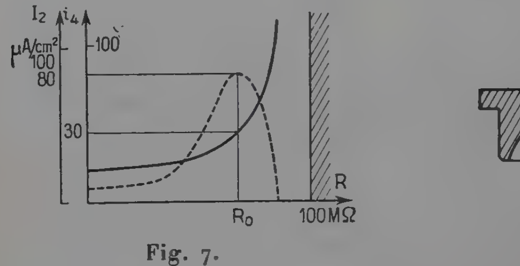


Fig. 7.

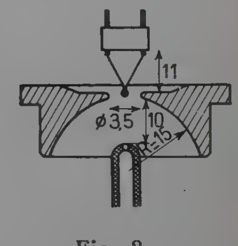


Fig. 8.

riences sont difficiles à conduire et à interpréter car nous ne mesurons pas la polarisation du wehnelt par rapport au filament, mais la résistance de polarisation. Il semble toutefois apparaître qu'il y ait une distance optimum de l'ordre de 10 mm. avec le wehnelt de diamètre 3,5 mm.

La figure 8 indique les dimensions géométriques qui ont fourni les meilleurs résultats et avec lesquelles la plupart des résultats présentés ici ont été obtenus. A noter que le filament ne pénètre pas à l'intérieur du wehnelt comme il le fait lors du fonctionnement avec les électrons.

IV. — ÉCRANS, PLAQUES PHOTOGRAPHIQUES ET VIDE

LES ÉCRANS

L'écran fluorescent utilisé habituellement, constitué par une pellicule de sulfure de zinc et de liant (acétate de cellulose) collée sur une plaque d'aluminium, s'est montré inutilisable avec les ions : délicat à préparer, il est rapidement détruit par les ions. La concentration en liant est critique : trop riche en produit fluorescent la pellicule est isolante et se détruit au moindre contact ; pas assez riches, les grains de produit fluorescent sont noyés à l'intérieur de la masse et, à cause de leur faible pouvoir de pénétration, les ions sont arrêtés par le liant et n'arrivent pas en contact avec le produit fluorescent. Le rendement lumineux est alors très faible.

A la suite de nombreux essais deux méthodes de préparation sans liant ont été utilisées qui donnent des écrans où l'on profite au maximum de la luminosité que peut donner le produit fluorescent ; elles permettent en outre d'obtenir des surfaces fluorescentes peu rugueuses, qualité très importante lors de l'observation de l'écran avec un petit microscope auxiliaire.

La première méthode utilise le *procédé de sédimentation*. On prépare une suspension du produit fluorescent dans l'alcool et on laisse ensuite dans une coupelle déposer les granules sur la plaque-support d'aluminium jusqu'à l'épaisseur convenable. On vide délicatement la coupelle et on laisse évaporer l'excès d'alcool. On a ainsi une couche fluorescente très fine mais peu résistante aux chocs et aux contacts.

On obtient une couche plus résistante en recouvrant la plaque d'aluminium d'une *fine couche d'un liant* (solution diluée d'acide orthophosphorique dans l'acétone, huile moléculaire sans tension de vapeur, acétate de cellulose dans l'acétone). On fait ensuite tomber à travers un tamis fin la poudre fluorescente sur cette couche lorsqu'elle est presque entièrement sèche. Avec une certaine habitude le support fixe une quantité convenable de poudre et l'excès est alors enlevé. On applique ensuite énergiquement à la surface de la couche fluorescente une plaque de verre soigneusement nettoyée, ce qui donne une couche parfaitement lisse superficiellement et exempte de granulation.

Le phénomène de charge de l'écran qui était très gênant avec le microscope ionique à émission n'est jamais apparu en transmission aux forts grandissements, les courants utilisés alors étant très faibles (environ 10^{-12} ampères par cm^2).

Les ions de 50 kV détruisant rapidement les produits fluorescents, la durée de vie de ces écrans était réduite. La luminosité, même pour une couche nouvellement préparée est *voisine du seuil de sensibilité de l'œil*, ce qui nécessite avant toute observation une accommodation d'une dizaine de minutes. Dans le but de faciliter l'observation visuelle ces écrans étaient généralement remplacés après environ quatre heures de fonctionnement.

Aucune bibliographie n'existant sur les produits fluorescents aux ions, un certain nombre d'essais ont été effectués avec des produits divers, tenant compte des trois facteurs importants : luminosité, résistance au bombardement et finesse de grain. Au total 40 produits ont été étudiés :

— sulfures de zinc préparés par Prolabo-Gignoux-CSF-Massiot, RCA ;

— tungstates et silicates de zinc de cuivre, préparés par CSF-SAFPE ;

— salicylate et corps dérivés ;

— borates préparés à l'ENS ;

— colorants organiques : rhodamine, éosine, uranine ;

— produits fluorescents préparés par Francolor et Kuhlman.

Le meilleur produit trouvé jusqu'ici est le sulfure jaune télévision de Gignoux. La willemite CSF est particulièrement résistante aux ions, mais sa fluorescence verte rend difficile la mise au point de l'image.

PLAQUES PHOTOGRAPHIQUES

En optique ionique le choix des plaques photographiques est, de la même façon que pour l'optique électronique, déterminé par deux facteurs : leur sensibilité et leur résolution. L'emploi des émulsions ordinaires s'était révélé *impossible dans le cas de la microscopie par émission* (11), les charges reçues n'arrivant pas à s'écouler et formant des cheminements. En microscopie ionique par transmission leur utilisation s'est aussi révélée impossible, non pour des raisons de conductivité superficielle, mais pour des raisons de sensibilité ; toutes ces émulsions sont beaucoup trop riches en gélatine.

Diverses émulsions possédant une grande concentration superficielle en grains sensibles ont été utilisées.

Schumanisation des plaques photographiques (12). — Cette technique consiste à enlever la gélatine à des plaques ordinaires à grain fin par action d'une solution diluée d'acide sulfurique. Nous avons utilisé des plaques au lactate Guilleminot. Cette préparation est très délicate, l'émulsion se détachant facilement au lavage ; la couche sensible est très fragile et souvent peu homogène. La finesse de grain est irrégulière ; par contre la sensibilité paraît très élevée. Nous n'avons préparé ces émulsions qu'en de très rares occasions, les propriétés des émulsions industrielles analogues étant bien plus régulières. Des études ultérieures systématiques seraient nécessaires notamment pour déterminer les meilleures conditions de préparation ; il est inutile d'enlever entièrement la gélatine, seule importe une concentration superficielle élevée en grains de bromure.

Plaques Q. — Ce sont des émulsions préparées par Ilford pour la spectrographie de masse. Elles existent en trois types dont les dimensions des grains et le contraste varient proportionnellement à la sensibilité, les plaques Q 1 étant lentes et les plaques Q 3 rapides.

Ces plaques ne sont pas particulièrement bien adaptées à la microscopie ionique. Les plaques Q 1 n'ayant pas une rapidité suffisante manquent aussi de contraste. Les plaques Q 3 par contre beaucoup plus sensibles et contrastées ont *une grosseur de grain* qui rend tout grandissement photographique ultérieur impossible. Les plaques Q 2 ont des propriétés intermédiaires ; ce sont elles qui généralement ont été utilisées. Toutes ces plaques sont aussi extrêmement fragiles, elles

se raient facilement dans la caméra et tout contact manuel ou mécanique les endommage irrémédiablement, aussi bien avant qu'après l'impression.

Plaques B 10. — C'est une émulsion utilisée en spectrographie U.-V., analogue aux plaques Schuman. Malgré leur *moins grande sensibilité*, elles sont bien mieux adaptées à la microscopie ionique que les plaques Q. Elles ne sont pas fragiles, ont un contraste élevé et ont surtout un grain très fin (110 traits par millimètre, soit sensiblement celui du pathélith, émulsion utilisée avec les électrons) qui permet facilement des agrandissements optiques de 10.

C'est avec cette émulsion que les meilleures photographies ont été obtenues. L'expérience a montré qu'il valait mieux opérer à un grandissement d'environ 6 000-8-000 avec des plaques B 10, le temps de pose étant alors de 30 secondes environ, plutôt qu'un grandissement maximum de 12 500 qui nécessite une pose de 2 minutes pour ces plaques, ou de 30 secondes pour les plaques Q 3.

Emulsions nucléaires. — Quelques essais très encourageants ont été effectués à la fin de ce travail avec quatre émulsions différentes de ce type. N'ayant pas été préparées spécialement pour cet usage elles étaient trop épaisses et se craquelaient dans le vide, mais leur finesse de grain était élevée et leur rapidité supérieure à celle des plaques B 10. Une étude systématique permettrait sûrement de préparer ainsi une émulsion de caractéristiques élevées.

Signalons, avant de terminer, que des essais de sensibilisation des émulsions n'ont donné aucun résultat. Le *salicylate de soude*, qui avait donné de bons résultats avec les plaques B 10 en microscopie par émission, s'est révélé inutilisable en transmission, les plaques enduites étant moins sensibles.

En conclusion nous insisterons sur le rôle important joué par les émulsions photographiques en ce qui concerne les résultats obtenus et ceux que l'on peut escompter dans l'avenir. Des études systématiques dans le domaine inexploré de leur sensibilité seraient nécessaires. Tous les espoirs sont permis, cette sensibilité étant pour les plaques à grain fin inférieure à celle des électrons dans un rapport de 10. Les temps de pose sont de l'ordre de 10 secondes à 2 minutes environ lorsque le grandissement varie de 3 000 à 12 500. Il y aurait intérêt, avec le même courant ionique, à pouvoir diminuer ce temps de pose : il faut beaucoup de chance lors d'une pose de 1 minute pour qu'il ne se produise pas de claquage ou seulement de légères fluctuations du débit du canon, ou une migration de l'image (charge parasite, déplacement de l'objet). *Toute augmentation de la sensibilité se traduira par une amélioration consécutive de la qualité des images obtenues.*

LE VIDE

D'une façon analogue à ce que nous avions déjà observé en microscopie par émission, la réalisation d'un *vide aussi poussé que possible* à l'intérieur de l'enceinte du microscope s'est avérée très importante. Pour un vide inférieur à 5.10^{-5} mm. Hg il est impossible d'obtenir une image présentant une bonne définition. Les chocs des ions sur les molécules de gaz résiduel sont trop nombreux ; l'image dans ces conditions manque de contraste et devient même pour un vide de 10^{-4} mm. absolument grise. D'autre part les bords des cristaux deviennent flous et diffus.

Les meilleures images que nous avons pu obtenir l'ont été pour des vides, mesurés à l'aide d'une jauge à ionisation placée sur le corps même de l'appareil, compris entre 0,5 et 1.10^{-5} mm. de mercure. Ceci nécessitait une propreté très grande de l'appareil, l'utilisation réduite au maximum des huiles et graisses à vide et un pompage de 1 heure minimum après chaque entrée d'air.

V. — LA TACHE CENTRALE

Dans son étude Boersch (5) avait observé au centre de ses photographies une *tache lumineuse*, caractéristique de toute image ionique. En agrandissant photographiquement cette tache centrale il y avait trouvé une structure dont les contours, relativement flous, étaient néanmoins analogues à ceux de l'image totale, mais avaient subi une rotation de 180°. La tache centrale semblait donc formée de *particules neutres*, produites par neutralisation des ions entre l'objectif et le projecteur et qui contrairement aux ions étaient passées à travers le champ électrostatique du projecteur sans être déviées. Les particules formant la tache centrale avaient été focalisées uniquement par l'objectif, ce qui explique la rotation de 180°.

Dès la première image nous avons observé cette tache centrale. Mais alors que Boersch, avec des intensités ioniques faibles, n'avait étudié cette tache que d'après des photographies, il était possible dans notre cas de *l'observer directement sur l'écran fluorescent*. Pour les courants ioniques que nous utilisions habituellement, son intensité était très forte : l'écran était rapidement brûlé à l'endroit où elle se formait. L'avantage d'observer directement l'aspect de l'image pour les divers réglages du microscope, nous a permis de préciser la nature de cette tache centrale et de montrer que les phénomènes sont en réalité plus compliqués que ceux observés par Boersch.

ORIGINE DE LA TACHE CENTRALE

Tout d'abord dans le cas d'un microscope *parfaitement réglé* il nous a été impossible d'observer le phénomène décrit par Boersch; nous n'avons jamais pu observer dans la tache centrale la moindre structure analogue à l'image totale. La tache est ronde, uniformément lumineuse. Dans certains cas cependant, assez rares mais difficiles à expliquer, tantôt une ligne sombre la partage en deux, tantôt ses bords ne sont pas absolument circulaires mais possèdent une symétrie octogonale (fig. 9); parfois encore la tache est circulaire, mais lorsque le vide est mauvais on peut apercevoir, centré sur celle-ci, un halo circulaire plus grand, peu lumineux mais très net (fig. 10).

Une étude plus poussée nous a cependant montré que dans certaines conditions il est possible d'observer la structure décrite par Boersch. Dans le cas du canon parfaitement centré, cette structure existe, mais elle n'est pas observable, étant cachée par une autre tache centrale d'origine différente dont l'intensité presque uniforme est beaucoup plus grande. Boersch a pu observer les phénomènes dont nous venons de parler, uniquement parce que son canon n'était pas centré. Il avait effectué un premier réglage avec des électrons et, après avoir remplacé le filament de tungstène par sa source d'ions, avait pris des photographies sans avoir rien pu observer sur l'écran. Dans notre cas, l'observation visuelle permettait par contre très facilement en cours de fonctionnement, de vérifier le centrage du faisceau ionique, par une simple variation de la tension de mise au point.

Lorsqu'on excentre intentionnellement le canon par rapport à l'objet et la première lentille, pour certains réglages du canon, on peut obtenir sur la même photographie deux taches centrales séparées, indiquant *deux modes différents de formation* de particules non déviées. Dans le cas de la figure 11 les deux taches ont sensiblement la même intensité. En déplaçant un peu plus le faisceau, on arrive à obtenir une séparation plus grande des deux taches, la tache de droite qui était la plus intense primitivement, finissant par disparaître complètement. On peut donc avoir à volonté une tache ou l'autre.

Dans la tache centrale ainsi dédoublée, on peut distinguer deux structures différentes, ce qui nous a permis de préciser l'origine et le mode de formation de ces particules non focalisées par les lentilles.

a) Une partie de la tache centrale est *celle déjà observée par Boersch*. Elle reproduit à une échelle plus petite l'image totale

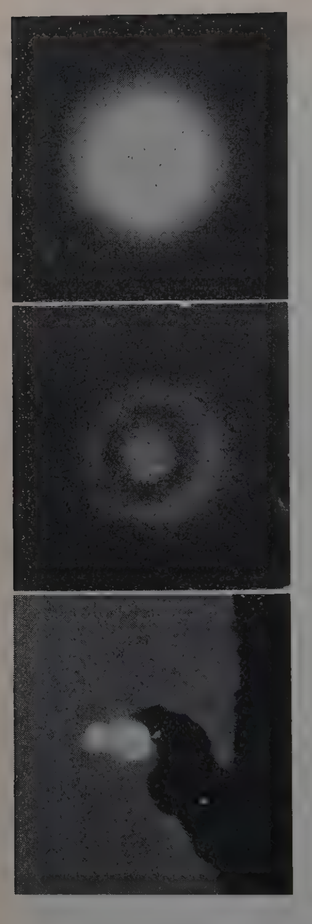


Fig. 9.

Tache centrale à symétrie octogonale. Image fortement agrandie optiquement.

Fig. 10.

La tache centrale est entourée d'une zone lumineuse sensiblement concentrique. Il semble que ce halo soit créé par les ions diffractés entre l'objectif et le projecteur par les molécules du gaz résiduel. L'angle observé est voisin de 10^{-2} ayant été agrandi 50 fois par le projecteur. Ce serait la première expérience de diffraction d'ions par un gaz.

Fig. 11.

Tache centrale dédoublée pour un faisceau incliné.

(fig. 12). On n'en voit ici que la partie non interceptée par le diaphragme de l'écran intermédiaire placé juste au-dessus du projecteur.

Son grandissement est d'environ 130, grandissement de l'objectif sur l'écran final. Remarquons que l'image obtenue dans la tache centrale est toujours floue, sa netteté n'étant pas comparable à celle de l'image analogue, réalisée avec des ions et obtenue lorsqu'on met le projecteur à la masse, l'objectif fonctionnant seul. La raison en est facile à comprendre : cette structure de la tache centrale est obtenue à l'aide d'ions qui ont été neutralisés et par suite légèrement déviés lors du choc. Un mauvais vide a pour effet d'augmenter sensiblement l'intensité de la tache, mais accroît aussi considérablement le nombre

des ions diffusés suivant un angle élevé, ce qui rend rapidement la structure floue, et même difficile à distinguer. La figure 13 montre une image ionique obtenue uniquement avec l'objectif, le projecteur étant à la masse. La figure 14 est un agrandissement de la tache



Fig. 12.

Image d'un cristal fournie par les deux lentilles à un faible grandissement. On distingue la tache centrale qui reproduit la structure du cristal.



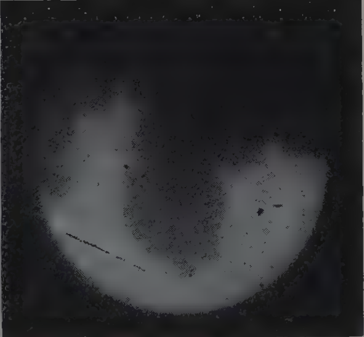


Fig. 13. Fig. 14.

centrale correspondante. Sa netteté décroît rapidement si on laisse remonter légèrement la pression dans l'appareil.

b) L'autre partie de la tache centrale a une origine différente. On peut en effet y distinguer les mailles d'une grille (fig. 15) ; cette grille ne peut être qu'une image ou une ombre de la grille du porte-objet. Le grandissement de cette image est d'environ 6. Le diamètre de la tache centrale étant à peine légèrement supérieur au pas de l'image de la grille ainsi obtenue, pour rendre ce phénomène plus visible

nous avons enlevé le diaphragme de l'écran intermédiaire qui limite le champ. Le grand nombre de mailles de la grille que l'on voit ainsi (fig. 16) montre qu'il s'agit bien d'une image par ombre du porte-objet.

L'objectif et le projecteur n'ont aucun rôle dans la formation de cette image : le grandissement de 6 subsiste, que ces deux lentilles soient polarisées ou mises à la terre. L'origine de cette image est à

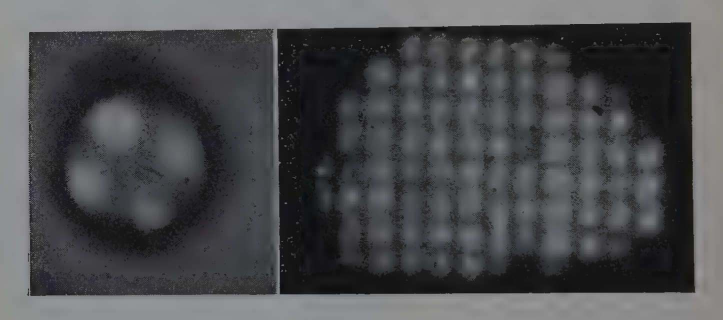


Fig. 15. Fig. 16.

rechercher sous le canon. Dans cette région où le faisceau ionique est très intense, il se produit une neutralisation d'un très grand nombre d'ions. La lumière produite par ce phénomène est facilement observable à l'intérieur du microscope à travers une petite fenêtre. Les ions et les atomes vont tous converger au cross-over du canon et c'est celui-ci qui joue le rôle de source ponctuelle. L'image observée est une *ombre de la grille* formée à partir de cette source par des particules neutres. En agissant sur la polarisation du wehnelt, on déplace ce cross-over verticalement et l'on modifie aussi sa finesse, ce qui a pour effet de faire varier légèrement à la fois la netteté de l'image et son grandissement.

ACTION D'UN CHAMP MAGNÉTIQUE

Lorsqu'on fait agir un champ magnétique au-dessous du projecteur (il n'y a aucune action au-dessus, à cause des blindages magnétiques) on observe un déplacement général de l'image ionique. Mais il se produit un phénomène curieux : *la tache centrale se dédouble* (fig. 17). Une partie neutre n'est pas déviée (à gauche sur la photographie) alors que la tache voisine indique que la tache centrale contient aussi des particules *chargées positivement.*

La tache centrale ayant deux origines différentes, il est intéressant de comparer l'action du champ magnétique sur l'une et l'autre de ses composantes.

Lorsqu'on fait agir le champ magnétique sur la partie observée par Boersch, il n'est pas possible d'observer de particule déviée, sortant de la « tache neutre » lorsque le vide est de 10^{-5} mm. Hg, mais dès que celui-ci est de l'ordre de 10^{-4} mm. Hg, une partie importante de la tache est déviée avec l'image ionique générale.



Fig. 17.

Un mauvais vide semble donc favoriser la formation de particules chargées et déviées par un champ magnétique.

Dans l'autre partie de la tache centrale, il est par contre toujours possible, même pour les meilleurs vides, d'observer une partie déviée. Ceci peut s'expliquer par le vide moins bon qui règne dans la tête du microscope, région où se forme le faisceau produisant cette partie de la tache.

Quelle est l'origine de ces ions positifs ainsi détectés au-dessous du projecteur ?

Puisqu'ils n'ont pas été focalisés par le projecteur, ces ions sembleraient être formés entre cette lentille et l'écran final. Les atomes du faisceau neutre constituant la tache centrale s'ionisent dans cet intervalle, soit par chocs électroniques, soit par absorption d'un rayonnement. Mais dans ce cas, l'ionisation de ces atomes se produirait *uniformément dans tout l'espace* qui sépare le projecteur de l'écran. L'action du champ magnétique ayant lieu juste au-dessous du projecteur, on devrait avoir dans ces conditions une image dédoublée de configuration tout à fait différente. Au lieu des deux taches intenses, bien délimitées et séparées, reliées entre elles par une bande peu lumineuse (fig. 18*a*) on devrait avoir une tache neutre intense et une zone correspondant aux particules chargées dont l'intensité irait en décroissant, les ions les plus déviés correspondant à ceux, peu nombreux, qui se sont formés dès la sortie du projecteur (fig. 18*b*).

Le faisceau constituant la tache neutre contient donc, *dès la sortie du projecteur*, un grand nombre de particules chargées. Quelques-unes sont ensuite formées entre le projecteur et l'écran intermédiaire (ou au contraire ont été neutralisées dans cette région) ; ce sont elles qui forment la région peu lumineuse entre les deux taches dans la figure 18*a* et la figure 17.

Comment expliquer la présence, à la sortie du champ électrique du projecteur de *particules positives mais non déviées par ce champ ?* Il semble n'y avoir que deux possibilités :

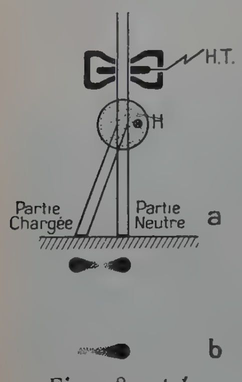


Fig. 18*a* et *b*.

1° On peut tout d'abord supposer qu'il y a ionisation d'une partie des atomes neutres constituant le faisceau de la tache centrale. Dans ce cas, l'aspect observé oblige à affirmer que la plus grande partie des ions formés doit l'être juste à *la sortie du projecteur.* Cette action localisée semble peu probable, surtout si l'on tient compte que le phénomène observé ne change pas si l'on met le projecteur à la masse.

2° L'autre explication consiste à voir là un *phénomène d'engagement*, c'est-à-dire l'entraînement d'ions par un faisceau d'atomes, les ions perdant leur individualité. Ils ne seraient pas extraits du faisceau atomique, donc pas focalisés, mais le champ magnétique arriverait à les en séparer. Le vide aurait une influence sur ce phénomène.

ENGAGEMENT D'ATOMES FAISCEAU DE PARTICULES

Il n'existe à notre connaissance qu'un seul travail sur le phénomène de l'engagement et dans des conditions expérimentales assez différentes de celles réalisées ici. C'est le travail publié en 1931 par Henriot, Goche et Dony-Henault (18). Ces expériences étant très peu connues, nous allons tout d'abord indiquer en quoi consiste le phénomène.

Lorsque deux faisceaux corpusculaires A et B de natures différentes, constitués soit d'électrons, soit d'ions ou d'atomes neutres, se croisent dans le vide, il se produit, dans certaines conditions, un entraînement partiel de l'un des faisceaux B par l'autre A. Si l'on fait agir sur le faisceau A un champ électrique ou magnétique, on obtient une déviation correspondant aux valeurs de sa vitesse et de son e/m. Mais le faisceau entraîné B, de e/m différent, subit les mêmes déviations que le faisceau A. Une fois « engagées » les particules B *perdent leur individualité* et restent solidaires du faisceau A qu'elles accompagnent dans ses déviations par les champs électriques ou magnétiques faibles. Par contre si ces champs sont intenses, on arrive à « dégager » l'un de l'autre les deux faisceaux qui deviennent alors indépendants, chacun subissant la déviation correspondant à sa vitesse et son e/m.

Il est possible d'envisager que dans le microscope nous sommes aussi en présence d'un phénomène d'engagement. Mais ici la nature des corpuscules a changé : au lieu de l'engagement d'atomes neutres dans un faisceau cathodique observé par Henriot, nous avons un *engagement d'ions dans un faisceau d'atomes*. Nous ne discuterons pas ici ce phénomène, qui est déjà très confus dans le cas des rayons cathodiques.

Les effets du phénomène sont cependant analogues. Nous avons ici (fig. 19) un faisceau mixte d'ions positifs et d'atomes neutres animés de vitesses voisines. Lorsqu'il tombe sur le projecteur, le faisceau ionique est focalisé (pour former l'image) alors que le faisceau d'atomes neutres (et les ions qui y seraient engagés) est insensible au champ électrique de cette lentille. Il forme la tache centrale.

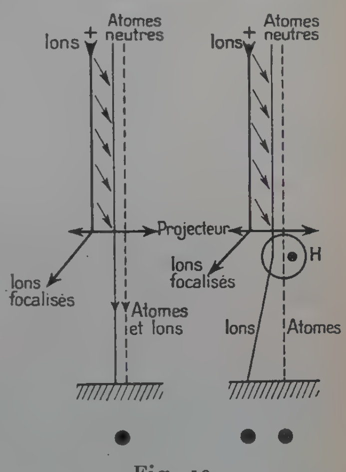


Fig. 19.

Lorsqu'on fait agir le champ magnétique au-dessous du projecteur on arrive à dégager les ions des atomes neutres. Ces derniers forment alors la partie non déviée de la tache centrale (tache neutre) alors que les premiers sont déviés exactement de la même distance que les ions engagés.

Il y aurait d'intéressantes recherches à effectuer dans ce nouveau domaine, de même qu'il en reste énormément dans le domaine plus simple au point de vue expérimental de l'engagement des atomes dans les faisceaux d'électrons.

IMAGES PARASITES

Lors de certains réglages du microscope (faisceau issu du canon légèrement incliné par rapport à l'axe optique des lentilles, potentiels particuliers sur les lentilles) nous avons pu obtenir certains phénomènes parasites en contradiction avec les principes généraux de la formation des images dans un microscope électronique classique. Une interprétation de la formation de ces images nous a permis de montrer que le faisceau ionique est le siège d'une *suite ininterrompue de neutralisations et d'ionisations successives*, certaines particules étant, comme nous venons de le voir, insensibles au champ électrique des lentilles.

Examinons la marche des rayons corpusculaires dans le microscope. Pour expliquer l'existence des diverses images parasites observées, nous verrons qu'il faut supposer que tout faisceau d'ions est toujours *partiellement neutralisé* par le gaz résiduel et que les atomes neutres ainsi formés sont capables de reprendre une charge positive à leur tour. Seuls les faisceaux intenses ainsi produits donnent des phénomènes observables.

Le filament incandescent F émet des ions qui sont focalisés par le wehnelt et l'anode au cross-over 1 du canon (voir le schéma figure 20). On

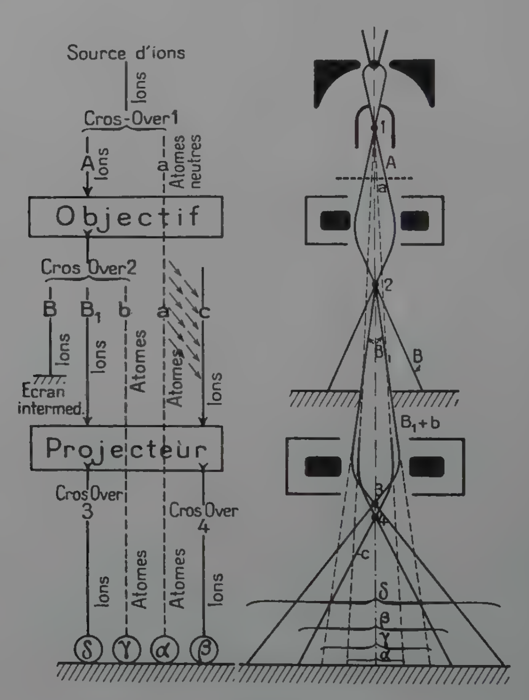


Fig. 20.

peut supposer que dans cette région il ne se produit aucun phénomène parasite, les distances mises ici en jeu étant très faibles (environ 20 mm.). De toute façon le diaphragme de l'anode arrête tout faisceau non focalisé correctement.

Le cross-over 1 joue donc le rôle de *source ponctuelle d'ions*.

Considérons tout d'abord la marche du faisceau ionique ordinaire. Le faisceau A issu du cross-over 1, après avoir traversé la grille de l'objet est focalisé par l'objectif et va converger au cross-over 2. De ce point part le le faisceau B qui forme sur l'écran l'image intermédiaire. Une partie B_1 de ce faisceau traverse le diaphragme de cet écran et est ensuite focalisée par

le projecteur. Elle converge au cross-over 3 et forme ensuite l'image classique à fort grandissement (image δ).

Considérons maintenant les *faisceaux parasites* qui se forment dans les divers étages du microscope et interviennent pour certains réglages dans la formation d'images.

Une partie du faisceau A d'ions issus du cross-over 1 est neutralisée. Ce faisceau (a) d'atomes neutres traverse l'objet et l'objectif sans être dévié, ensuite le diaphragme intermédiaire puis le projecteur qui n'a également aucune action sur lui. On obtient sur l'écran final une *ombre atomique de la grille* à faible grandissement. C'est la partie de la tache centrale reproduisant la grille, que nous avons déjà considérée (image α).

Le long de son parcours dans le microscope une partie du faisceau (a) précédent est ionisée à son tour dans l'espace qui sépare les deux lentilles. Le faisceau (c) d'ions ainsi produits est focalisé par le projecteur et donne une image de la grille (fig. 21) à un grandissement d'environ 180 (dépendant uniquement de la tension sur le projecteur). C'est l'image β à laquelle correspond le cross-over 4 situé au-dessous du cross-over 3.

D'une façon analogue, une partie du faisceau B d'ions issus du cross-over 2 est neutralisée (faisceau (b)), et après traversée sans déviation du projecteur va former l'image γ sur l'écran final. C'est la seconde partie de la tache centrale, la seule image parasite observée par Boersch, qui reproduit l'objet avec le seul grandissement de l'objectif.



Fig. 22. Fig. 21.

On peut ainsi obtenir sur la même photographie (fig. 22) trois images différentes. Au centre l'image (tache centrale) dédoublée par un champ magnétique. On distingue dans la composante chargée une image de la grille. Cette structure n'est pas visible dans la composante neutre située au-dessus qui a été surexposée. On a ensuite l'image β à un grandissement plus élevé visible sur toute l'image et à la partie inférieure droite l'image δ classique à fort grandissement.

VI. — SPECTROGRAPHIE DE MASSE

Dans la série d'expériences que nous allons décrire, nous avons fortement sous-volté le projecteur (environ 2 000 volts de tension pour des ions accélérés sous 50 000 volts) de façon à amener le cross-over du faisceau dans le plan de l'écran final. On obtient ainsi un point dont le diamètre est inférieur à 0,1 mm.

Lorsque le canon est centré, l'image du cross-over se forme au milieu de la tache centrale et est difficile à distinguer. En décentrant le canon il est possible de faire sortir le cross-over de cette tache.

Au cross-over viennent se rencontrer à la fois les différents ions focalisés par les deux lentilles et les particules neutres créées le long du faisceau. *Par action d'un champ magnétique* il est possible d'analyser les divers constituants qui viennent se concentrer en ce point. On a ainsi une méthode sensible mais peu précise de spectrographie de masse. Des améliorations peuvent être proposées et il est probable que l'utilisation des procédés élégants de l'optique électronique permettrait de réaliser un spectrographe de caractéristiques bien supérieures.

Remarquons tout d'abord que nous sommes ici dans des conditions particulièrement favorables pour la spectrographie de masse, conditions jamais strictement réalisées dans les autres appareils :

— le faisceau est *monocinétique :* moins de 0,5 volt de dispersion à l'émission. Haute tension stabilisée (1/1 000 environ) ;
— le faisceau est *étroit :* son diamètre maximum est de 0,6 mm. ;
— le faisceau est sensiblement *parallèle :* son ouverture est de 1/250 radian.

Ceci explique pourquoi avec un simple électro-aimant constitué d'un barreau de fer doux de 5 cm. de diamètre, entouré d'une bobine de 500 spires alimentées par des accumulateurs, il a été possible d'obtenir une résolution de 1/40. Un champ magnétique plus intense et plus uniforme donnerait des résultats bien supérieurs.

ÉTUDE DES IONS ÉMIS PAR LES ALUMINO-SILICATES ALCALINS

Il a été possible d'obtenir des spectres de plusieurs sources solides préparées par G. Couchet (10) et en particulier celles que nous avons utilisées pour obtenir les images ioniques : source de Li^+ préparée à partir de carbonates au four à induction, source très pure de Na^+ préparée au four solaire.

La figure 23 montre un spectre de la source de Li^+ au début du chauffage. La partie neutre, origine des distances est située en haut. On distingue une traînée (visible seulement avec les poses suffisamment longues). Ce fond continu qui limite la sensibilité de la méthode provient des particules qui n'ont été chargées que sur une partie du trajet dans le champ magnétique.

Les ions observés sont tous des *métaux alcalins ionisés une seule fois*, mais pour les deux sources utilisées l'émission contient, avec l'ion principal, des ions parasites dont le pourcentage varie à la fois en fonction du temps et de la température.

Aucun des spectres, pourtant obtenus dans des conditions expérimentales différentes, ne permet d'affirmer la présence de la moindre trace de Rb^+ et Cs^+. Nous n'avons non plus jamais observé d'ions ionisés deux fois ou de molécules ionisées. Nous avons par contre nettement mis en évidence la présence d'ions plus inattendus.

Il s'agit tout d'abord de l'*ion hydrogène* H^+ présent parfois en assez grandes quantités. Son origine peut être expliquée de deux façons différentes :

— il peut provenir de traces de vapeur d'eau (ou d'hydrogène) présentes dans la substance et qui sont émises par effet thermoionique, suivant un processus analogue à celui des ions alcalins. Mais ceci ne peut expliquer une émission durant plusieurs heures ;

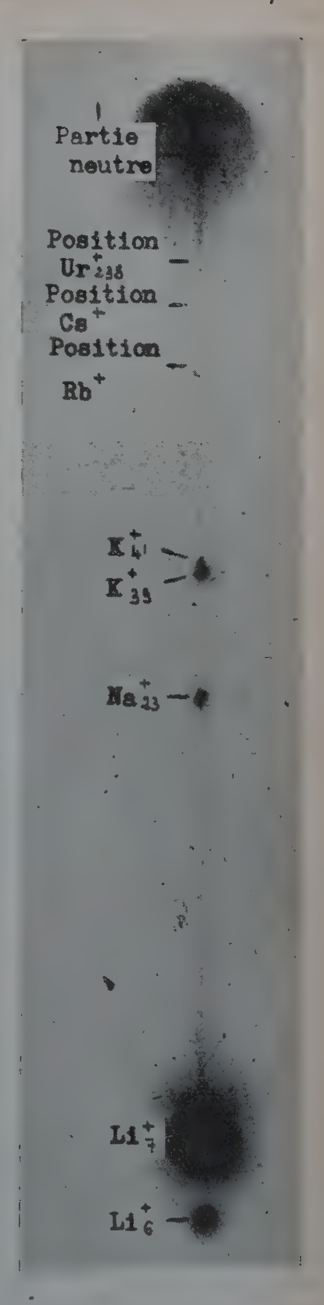


Fig. 23. — Spectre obtenu avec la substance G 01, 10 minutes après le début du chauffage.

— il est aussi possible que ces protons soient obtenus par effet Langmuir-Kingdom, les atomes d'hydrogène s'ionisant au contact de la surface de verre portée à plus de 1 000° C. Cette hypothèse est moins plausible que la précédente, le potentiel d'ionisation de l'hydrogène étant de 13,5 volts, valeur bien supérieure aux potentiels d'ionisation des autres constituants du verre.

La source de Li^+ contenait des quantités notables d'ions Na^+ et K^+. Aux basses températures, dès le début du fonctionnement, on a une émission des éléments possédant le plus faible travail d'ionisation, c'est-à-dire du K^+ et du Na^+ ; au bout de quelques minutes de fonctionnement (nous avons vu que l'émission décroissait) ces deux ions sont presque entièrement évaporés.

On a ensuite une émission constante d'ions Li_6^+ et Li_7^+ avec cependant encore de légères traces de K^+ et Na^+. Si l'on augmente la température de fonctionnement, on obtient à nouveau une émission plus riche en ions K^+ et Na^+, mais au bout de quelques minutes l'émission est à nouveau constituée principalement d'ions Li^+. Il semble qu'à l'équilibre, contrairement aux conclusions de Bainbridge qui ne possédait pas un spectrographe suffisamment sensible, on obtienne toujours, à côté des ions Li^+, des quantités assez faibles d'ions Na^+ et K^+ qui malgré leurs potentiels d'ionisation plus faibles ne sont jamais entièrement épuisés dans la source.

La source de Na^+ préparée au four solaire avec des produits beaucoup plus purs, a présenté des phénomènes analogues. Elle contient comme principale impureté du potassium ; mais d'après la théorie, le lithium qui a un potentiel d'ionisation supérieur de 0,25 eV à celui du Na, et qui n'est présent qu'à l'état de traces, ne devrait pas être décelable. Nous avons observé, au contraire, que le lithium est émis en grande abondance dès les premières secondes ; son intensité décroît ensuite rapidement. Mais il reste toujours présent en quantités décelables même après deux heures de fonctionnement. Par élévation de la température on a, comme pour la source précédente, une augmentation intense, mais passagère de l'émission des deux impuretés Li^+ et K^+, qui diminue ensuite pour atteindre son équilibre.

Il nous paraît important avant de terminer d'insister sur ce fait surprenant que des corps présents à l'état de traces (moins de quelques unités pour mille) et dont le travail d'ionisation est supérieur à celui de l'ion principal, sont constamment présents dans l'émission, alors que certains autres alcalins de potentiels d'ionisation très faibles sont impossibles à déceler. Remarquons aussi qu'une élévation de température provoque une augmentation plus grande de l'émission des impuretés que de celle de l'ion principal. Il semble donc que l'émission ne soit pas régie seulement par les valeurs des potentiels d'ionisation, mais par *les vitesses de diffusion* des ions à travers les mailles du réseau. Les ions (ou atomes) H^+ ou Li^+ de diamètres

faibles se déplaceraient plus vite vers la surface que les ions de dimensions plus considérables, de sorte que la concentration de ces premiers serait toujours à la surface supérieure aux proportions stœchiométriques.

IONS NÉGATIFS

Nous avons pu aussi observer nettement la présence d'ions négatifs à l'état de traces. Leur existence est liée à celle de l'ion positif correspondant car ils ne sont observables que lorsque celui-ci est présent en grande quantité. Ce ne sont pas des ions émis spontanément par l'anode car ils ne seraient pas accélérés par le canon. Leur formation s'est faite au cours de la propagation du faisceau positif dans le microscope. Leur vitesse est sensiblement la même que celle des ions positifs, mais les taches spectrales obtenues sont beaucoup moins nettes. Le projecteur qui agit sur ces ions comme une lentille faible a une convergence indépendante du signe de la particule.

Avec la source de Li^+ nous avons identifié les ions Li_6^- et Li_7^- (fig. 24). Nous avons aussi mis en évidence l'ion Na^- et de façon douteuse l'ion K^-, avec une source mixte de Na^+, K^+. Avec cette

Ions négatifs



Ions positifs

Fig. 24. — Ions négatifs Li_6^- et Li_7^-.
A droite la tache centrale neutre non déviée.

même source, pour certains réglages donnant une très forte intensité de protons, nous avons pu facilement observer sur l'écran et photographier le point correspondant à l'ion H^-.

Il existe très peu de travaux expérimentaux sur les ions négatifs. Ils se forment toujours en très faibles quantités et la grande majorité des recherches effectuées jusqu'ici concernant les ions positifs, aucun système de détection n'est prévu pour ceux qui sont déviés en sens contraire. J. J. Thomson à l'aide de son spectrographe à paraboles dans des conditions assez analogues avait déjà observé l'existence de H^-. Il faut ensuite arriver à Sloane et Love (31) qui étudient en 1948 les ions négatifs émis, dans des conditions tout à fait différentes,

par une cathode à oxydes chauffée, sous l'effet du bombardement des ions positifs formés dans le gaz résiduel. Ils observent les ions Li_6^- et Li_7^- avec un rapport isotopique voisin de celui des ions positifs.

Quant aux ions Na^- et K^- ils n'avaient jusqu'ici jamais été observés. Sloane et Watt (32) avaient décelé deux pics de masse apparente 22 et 23 avec un rapport d'intensité sensiblement égal à celui des isotopes du lithium. Ils en concluent à la présence de $Li_7O_{16}^-$ et $Li_6O_{16}^-$ plutôt que de Na^-. Dans notre cas l'existence de Na^- semble au contraire probable, correspondant au pic de masse apparente 23 ± 1. La raie spectrale étant toujours floue on ne peut en conclure l'absence de la masse 22 ; mais la source de sodium utilisée est très pure, les ions positifs Li_7^+ et Li_6^+ étant très peu intenses et les ions négatifs correspondants absents, la présence de $Li_6O_{16}^-$ est par suite peu probable. L'ion K^- n'a été observé que sur un seul spectre. Les deux isotopes n'ont pas pu être décelés. D'autres expériences seraient nécessaires pour confirmer ces résultats.

SPECTROGRAPHIE DE MASSE ET MICROSCOPIE IONIQUE

Si l'on examine les principes utilisés dans les spectrographes de masse actuels, on voit que le champ magnétique y remplit un double rôle ; non seulement il analyse les masses, mais il sert aussi à condenser les faisceaux. Il est surprenant que l'on n'ait pas, par simple analogie avec le spectrographe ordinaire, séparé la focalisation de la sélection des masses. L'utilisation de lentilles électroniques doit permettre de réaliser avec une grande souplesse cette focalisation alors qu'un champ magnétique quelconque (on suppose que le faisceau est étroit dans la région où le champ magnétique agit) et de faibles dimensions réalise la séparation des masses. Cette idée avait été développée dès 1938 par Cartan (7) mais l'optique électronique n'en était alors qu'à ses débuts, ce qui l'avait obligé à utiliser une lentille à grille dont les propriétés focalisatrices sont défectueuses. Les lentilles électrostatiques actuelles semblent mieux adaptées à cette utilisation. Remarquons que dans un domaine tout à fait analogue, celui de la diffraction des électrons, la pleine utilisation des possibilités de l'optique électronique est réalisée depuis longtemps et s'est traduite par une amélioration considérable des diagrammes obtenus.

Examinons le principe de l'appareil décrit dans le paragraphe précédent. A première vue nous remarquons son analogie avec le spectrographe de J. J. Thomson. Mais dans cet appareil, pour avoir un spot de 1 mm. de large, on est obligé d'utiliser deux diaphragmes

de 0,1 mm. de diamètre F_1 et F_2 espacés de 20 cm. qui limitent à 10^{-2} radian le faisceau issu de la source.

Dans notre cas, par l'emploi de lentilles, nous avons avec trois étages de focalisation un spot beaucoup plus intense et de diamètre inférieur à 0,1 mm. (fig. 25).

A l'aide d'un wehnelt L_1 entourant la source nous formons devant celle-ci un cross-over C_1 ; l'objectif L_2 donne une image de ce cross-over en C_2. C'est ce nouveau cross-over qui joue le rôle de source pour le spectrographe lui-même. On voit que l'ouverture dans le canon est de 180°. Tous les ions issus de la source à l'intérieur de cet angle vont converger au cross-over C_2.

Le faisceau qui est issu du cross-over C_2 est réduit par le diaphragme F. Il passe ensuite à travers le projecteur L_3 qui en forme

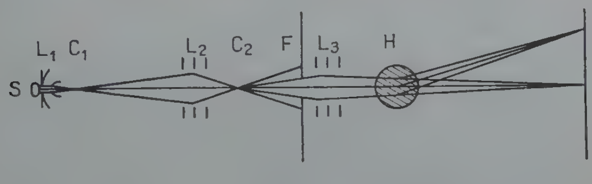


Fig. 25.

une image sur l'écran final. Le point faible de l'appareil est ce diaphragme F, rendu nécessaire par les dimensions géométriques de l'appareil, mais qui arrête la plus grande partie de cet intense faisceau. Dans un appareil bien conçu ce diaphragme F se trouverait au voisinage du cross-over C_2 ; il n'intercepterait alors qu'une faible partie de ce faisceau.

Nous voyons les avantages de cet analyseur de masse. Il présente tout d'abord une *grande facilité de réalisation* alliée à une latitude très grande de réglage, par simple variation de potentiels électriques. Il n'est plus besoin de faire appel à des formes compliquées de pièces polaires qui doivent être réalisées sans tâtonnement avant la construction de l'appareil ; nous utilisons un appareillage analogue à l'appareil de J. J. Thomson, le spectrographe le plus facile à réaliser. D'autre part l'utilisation de l'optique électronique élimine le principal inconvénient de ce dernier appareil, son manque de luminosité. Les résultats présentés plus haut donnent une idée de la *sensibilité* obtenue ici. Le fait d'avoir décelé des traces d'ions négatifs inconnus jusqu'ici en est un des meilleurs exemples. Un autre exemple probant sera fourni par le spectre d'une source de Na^+, qui étudiée à l'aide d'un spectromètre ordinaire n'a révélé que du K^+ comme impureté, alors qu'une photographie prise avec le microscope montre clairement que même après une heure et demie de fonctionnement, on peut encore

facilement détecter les isotopes Li_6^+ et Li_7^+ avec une pose de 10 secondes seulement.

Un calcul approximatif permet d'avoir une idée de la sensibilité de l'appareil. Pour les plaques photographiques Eastman III-O, analogues aux plaques Q utilisées ici, 10^{11} ions par centimètre carré (10^{-9} coulomb/cm^2) d'énergie 10 000 volts et de masse 100 donnent une image développable (20). Lorsque l'appareil fonctionne en microscope ionique, au plus fort grandissement, ce seuil de sensibilité correspond à une pose de 100 secondes ; la surface de l'image est dans ces conditions voisine de 100 cm^2. Le courant total reçu par l'écran est donc de 10^{-9} ampère. C'est le même courant qui est analysé dans le spectre, mais alors il est concentré entièrement dans le spot de surface 10^{-4} cm^2. L'intensité y est donc de $10^{-9} \times 10^{6} = 10^{-3}$ amp./cm^2. Comme il est possible d'obtenir des spectres, sans que le fond continu commence à apparaître, avec une pose de 100 secondes, nous pouvons recevoir dans le spot 10^{-1} coulomb/cm^2, soit 10^8 fois la dose minimum correspondant à une image développable. La limite de détection d'une impureté correspondant à une image juste développable, nous voyons que *nous pouvons déceler une impureté à la dose de $1/10^8$* (1). Le courant correspondant à une impureté de cette concentration est de 10^{-17} amp.

Du calcul précédent nous pouvons tirer quelques conclusions :

— Le fait de sommer les particules du faisceau en les recevant sur une plaque photographique n'entre dans l'estimation de la sensibilité de l'appareil que pour un coefficient 100 (pose de 100 sec.) au lieu de 10^4 et même plus en spectrographie optique. La sensibilité élevée provient surtout de l'utilisation simultanée de l'optique électronique et de la plaque photographique : on concentre une énergie très faible, difficilement mesurable par les méthodes électriques, sur une surface extrêmement petite *où son intensité locale lui permet d'avoir un effet détectable.* Toute diminution de la taille du spot se traduira par une augmentation parallèle de la sensibilité.

— Il serait possible d'accroître encore considérablement cette sensibilité par une utilisation plus rationnelle de l'optique électronique axée vers une *augmentation du courant total* reçu sur tout le spectre. Ce courant n'est ici que de 10^{-9} amp., c'est-à-dire de l'ordre de celui reçu par les spectromètres ordinaires. Un gain d'au moins 100 peut être considéré comme encore réalisable (augmentation du débit du canon, diminution de l'intensité interceptée par les diaphragmes).

(1) Cette évaluation de la sensibilité a été faite pour un corps de masse 100. Les plaques sont au moins 10 fois plus sensibles pour les éléments légers.



Fig. 26. — Oxyde de molybdène. Ion Li^+ de 55 kV.
G direct = 6.000. G total = 18.000.
Plaque Q 1. Pose = 20 sec.

MASSON ET Cie, ÉDITEURS

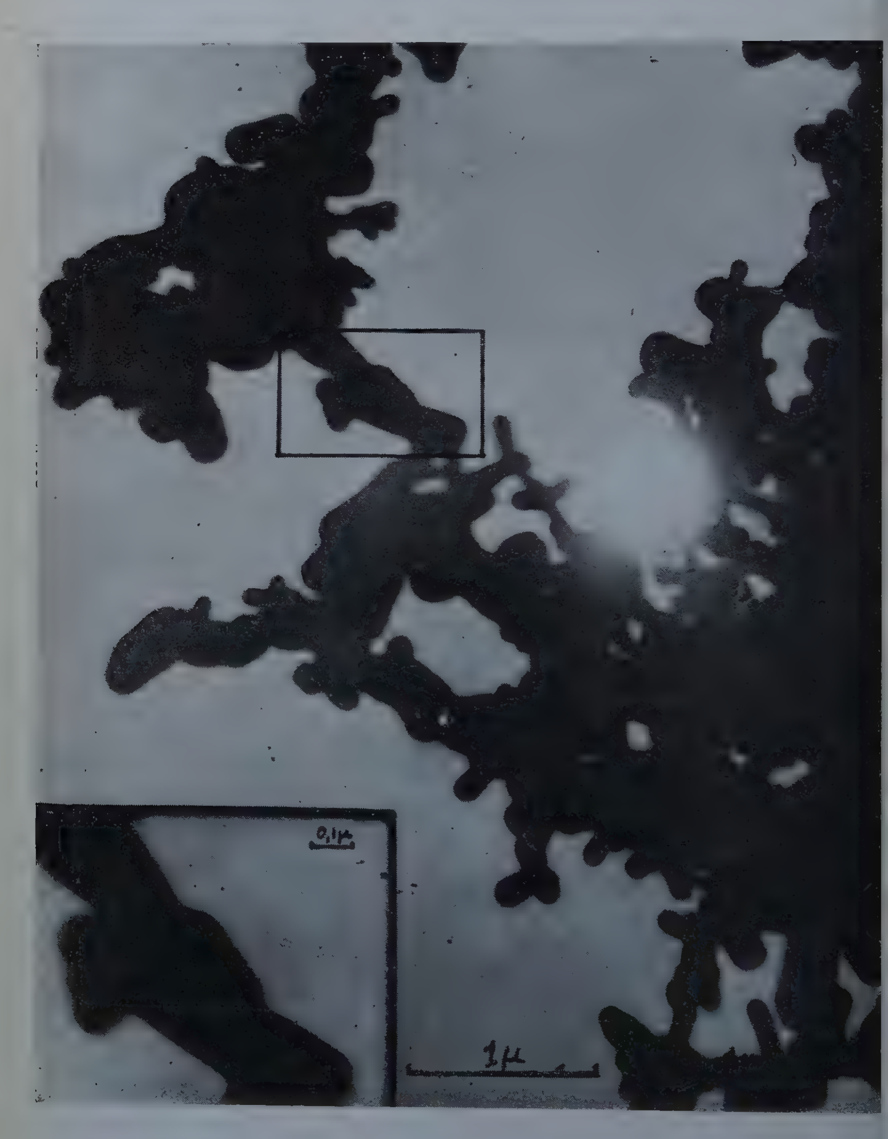


Fig. 27. — Oxyde de molybdène.
G. direct = 12.500.
G. total = 25.000.
Plaque B 10.

MASSON ET Cie, ÉDITEURS



Fig. 28. — Oxyde de zinc.

G direct = 12.500
G total = 16.000
Plaque Q 1.
Pose 30 sec.
HT = 23.500 V

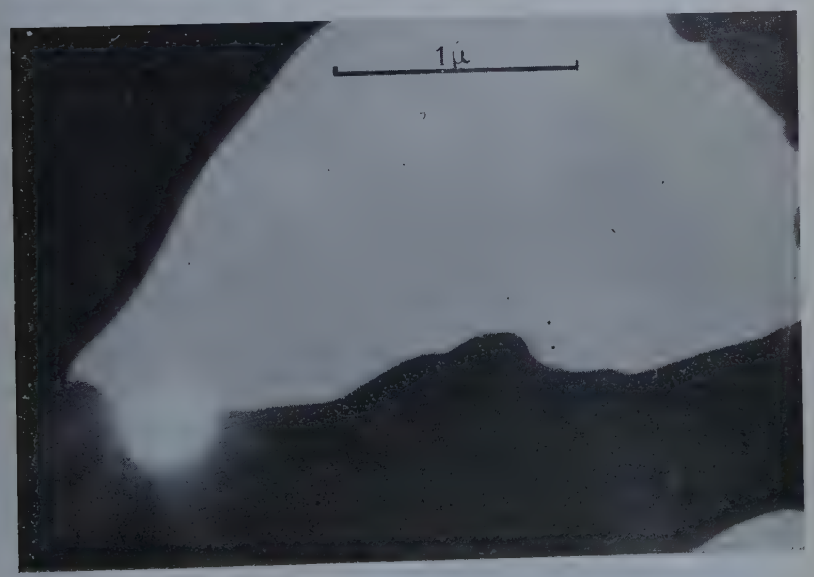


Fig. 29. — Bords d'un cristal d'oxyde de molybdène.
G = 40.000. Plaque B 10. Pose = 45 sec.
HT = 55.000 V.

MASSON ET Cie, ÉDITEURS

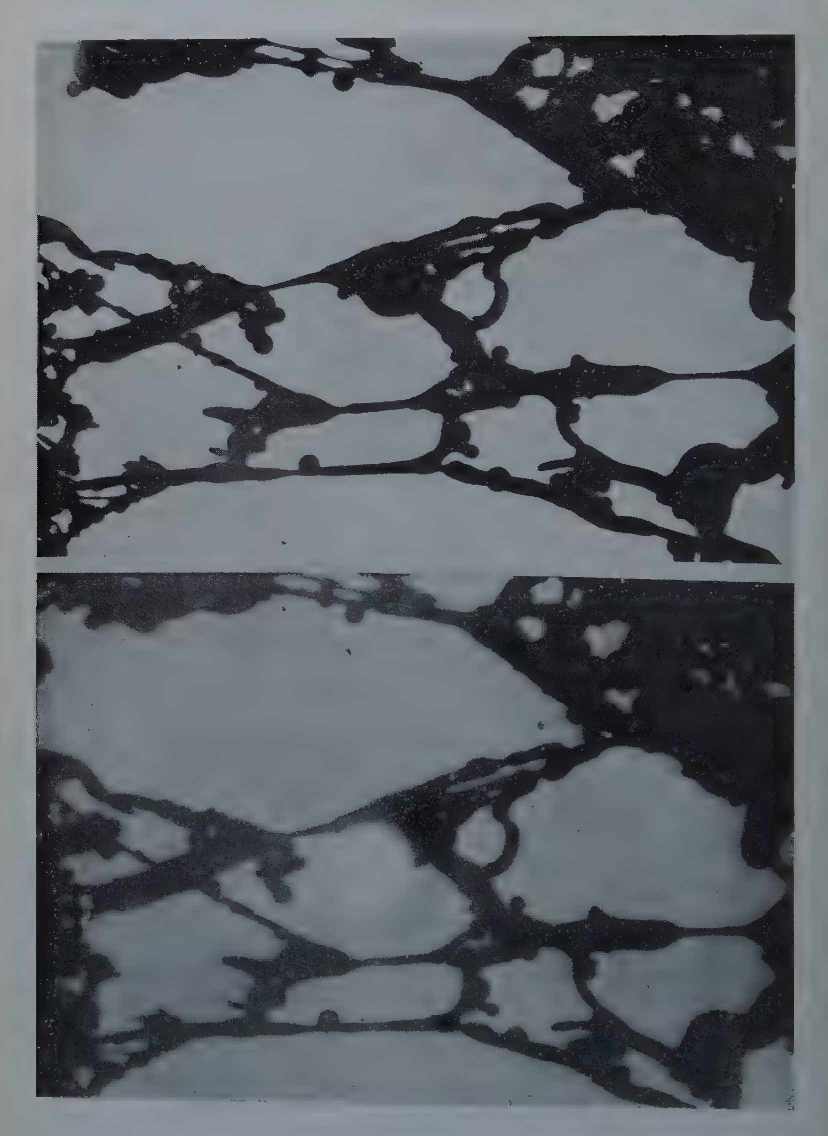


Fig. 30. — Oxyde de zinc. Image électronique à la partie supérieure. Image ionique à la partie inférieure. G = 20.000.

Masson et Cie, Éditeurs.

— On peut aussi espérer une légère amélioration des plaques photographiques, le seuil de sensibilité pour les ions étant actuellement inférieur de deux puissances de dix au seuil relatif aux électrons. Cette sensibilité varie d'ailleurs avec la masse des ions.

— Une diminution du nombre des ions formant le fond continu (utilisation d'un meilleur vide et de diaphragmes) permettrait par des temps de pose plus élevés, de profiter dans une plus large mesure de l'effet intégrateur des plaques photographiques.

VII. — RÉSULTATS

L'élimination de la plupart des difficultés expérimentales suivant les techniques que nous venons d'exposer nous a presque permis d'atteindre le but que nous nous étions fixé pour ces recherches : *obtenir d'un instrument la même finesse d'image, qu'on éclaire l'objet avec des électrons ou avec des ions lithium.*

Le pouvoir séparateur théorique de l'appareil avec des électrons de 50 kV est de 17 Å et de 6 Å avec les ions Li^+ accélérés sous la même tension (l'aberration de diffraction n'intervenant plus dans ce cas). Les conditions opératoires ont été les mêmes avec les ions et avec les électrons : mêmes lentilles, haute tension légèrement plus élevée, même ouverture du faisceau, canon presque identique. Puisque avec cet appareil, les résultats que l'on peut obtenir avec les électrons sont limités non par les aberrations géométriques ou de diffraction, mais par les défauts mécaniques ou électriques — défauts indépendants du signe du corpuscule utilisé — les résultats avec les ions pouvaient être au maximum identiques à ceux obtenus avec les électrons. Les difficultés expérimentales étant plus nombreuses avec les ions, le pouvoir séparateur obtenu avec ces particules a été environ deux fois plus mauvais. Lors d'une amélioration future du pouvoir séparateur on devra donc s'efforcer de diminuer ces aberrations du « deuxième type ».

IMAGES A FORTS GRANDISSEMENTS

Nous n'avons utilisé comme objet que deux types de cristaux d'oxydes métalliques : oxyde de zinc et oxyde de molybdène. Ces deux objets, faciles à préparer et résistants, ont de plus l'avantage de donner rapidement une idée de la qualité de l'image obtenue.

Avant de présenter quelques-uns des résultats atteints, il semble nécessaire de faire deux remarques préliminaires, les photographies ioniques ayant un aspect différent des photographies électroniques.

— Seuls sont visibles les plus gros cristaux, les extrémités des petits cristaux ayant été brisées ou fondues par le bombardement des ions, phénomène sur lequel nous reviendrons plus loin. Nous ne recherchions pas d'ailleurs d'image typique de l'oxyde, le même objet étant souvent observé pendant plus d'une semaine.

— Aucun détail n'est visible à l'intérieur des cristaux : ceux-ci sont absolument opaques aux ions de 50 kV et nous n'avons que des effets de bords.

Les figures 26 à 29 (voir planches I, II, III) représentent quelques-unes des meilleures photographies obtenues avec des ions Li^+. Certains agrandissements partiels permettent de se rendre compte de la qualité des images. Pour quelques photographies seules sont nettes certaines arêtes parallèles à une direction (variant d'une photographie à l'autre). Les causes de ce phénomène sont probablement doubles :

— d'une part l'astigmatisme d'ellipticité des lentilles,

— d'autre part la migration lente de l'objet au cours de la pose photographique.

D'une façon générale toutes les photographies à pouvoir de résolution élevé ont été obtenues avec :

— des plaques Q au grandissement direct de 12 500 et un temps de pose de 10 à 30 secondes, mais la granulation de ces plaques empêche souvent d'utiliser au maximum la qualité du négatif ;

— des plaques B 10 à un grandissement direct voisin de 8 000 et un temps de pose de 20 à 45 secondes ; les agrandissements photographiques ultérieurs du négatif peuvent être très élevés, mais dans ce cas la mise au point de l'image doit être réalisée avec un grand soin sur l'écran fluorescent.

Avec le montage réalisé il était très facile, nous l'avons vu, d'obtenir *successivement des images ioniques et électroniques* de la même région par une simple inversion de la tension accélératrice. La figure 30 (voir planche IV) ne montre, à part la disparition de la tache centrale, aucune différence notable. Les cristaux observés ici, relativement épais, sont aussi opaques aux électrons qu'aux ions. Il est cependant difficile de se prononcer au sujet de l'influence de la charge d'espace car, d'une façon générale, si deux arêtes correspondantes ont des nettetés comparables, il semble par contre qu'un trou dans un cristal soit toujours plus flou et de dimensions légèrement inférieures quand il est photographié avec les ions. Il est possible que ce phénomène soit dû plus simplement au fait que le pouvoir de résolution de l'image ionique est légèrement inférieur à celui de l'image électronique.

Nous avons évalué *le pouvoir séparateur* par la seule méthode utilisable avec les ions (voir page 7), celle qui utilise la répartition lumineuse sur l'image d'une arête rectiligne ; cette méthode précise

pour des mesures relatives, donne aussi une idée des valeurs absolues. L'étude d'un grand nombre de négatifs nous a permis de conclure que le pouvoir séparateur pratique obtenu avec les ions dans les meilleures conditions était voisin de 80 Å, c'est-à-dire sensiblement deux fois moins bon que celui obtenu avec le même appareil utilisant des électrons.

Ces résultats correspondent à une amélioration du pouvoir séparateur d'un facteur 10 par rapport à celui obtenu par Boersch (5) et semblent aussi être supérieurs à ceux publiés par Magnan et ses collaborateurs (8) et obtenus avec des protons.

Cette diminution, de moitié environ, de la résolution des images lorsqu'on passe des électrons aux ions a deux origines différentes; l'une est déterminée par l'appareil et son mode de fonctionnement avec les ions, l'autre est liée à l'objet lui-même.

Certains des défauts de l'appareil sont du même ordre de grandeur avec les deux types de particules, mais nous avons vu tout au cours de cette étude qu'il en existe d'autres, propres aux ions, qui sont dues aux conditions opératoires différentes. Les principales sont :

— difficulté de mise au point par manque de luminosité de l'écran,
— temps de pose trop long,
— granulation trop forte des plaques photographiques.

A côté de ces défauts provenant d'un fonctionnement de l'appareil dans de mauvaises conditions et que l'on peut espérer diminuer individuellement par des études systématiques, il en existe d'autres, plus délicats à éliminer, qui proviennent de *l'interaction du faisceau de corpuscules avec l'objet lui-même.*

PHÉNOMÈNES PARASITES

A l'échelle du grandissement utilisé jusqu'ici nous pouvons distinguer trois actions différentes du bombardement ionique sur l'objet. Ces trois phénomènes parasites sont analogues à ceux observés avec les électrons pour certains réglages où la partie éclairée de l'objet reçoit une très forte intensité spécifique. Mais dans les conditions ordinaires de fonctionnement leur influence est pratiquement négligeable, tandis qu'avec les ions il est possible qu'ils imposent une limite à la résolution obtenue.

Destruction de l'objet. — Les deux oxydes métalliques que nous avons observés sont très sensibles au bombardement ionique. Après quelque temps de fonctionnement, il ne reste plus que quelques amas de gros cristaux en certaines régions de la préparation.

La destruction semble s'effectuer en deux stades. Dès les premiers temps du bombardement tous les petits cristaux, moins résistants,

sont brisés sous l'effet de l'impact des ions ; ils pendent à la partie inférieure de l'objet et tombent même en grande quantité sur les électrodes de l'objectif. Ainsi s'explique l'aspect tout à fait particulier des photographies présentées. Lorsque tous ces cristaux ont été arrachés, on observe, en deuxième partie, des transformations très lentes de l'image, les cristaux se déplaçant les uns par rapport aux autres sous l'effet de contraintes. Parfois brusquement certains d'entre eux entrent en fusion, donnant naissance à des cristaux aux formes arrondies, tels ceux observés sur la plupart des photographies.



Fig. 31.

Vibration des cristaux. — Sous l'effet du bombardement, les extrémités d'un grand nombre de cristaux se mettent à vibrer, rendant impossible toute focalisation. Ce phénomène est particulièrement net sur la figure 31, où, à côté de certains cristaux suffisamment rigides pour être focalisés, les extrémités de certains autres sont très floues, seules les positions extrêmes de vibration étant indiquées. Cette vibration s'observe très fréquemment au cours du premier stade de destruction de l'objet. Avec certains spécimens d'oxyde de zinc particulièrement fins, ce phénomène parasite était si intense qu'il rendait absolument impossible la focalisation de la moindre arête.

Dépôt sur l'objet. — Au cours d'utilisations particulièrement longues d'un même spécimen, nous avons pu observer qu'il se produit en permanence sur l'objet un dépôt qui modifie petit à petit l'aspect de l'image. Une description qualitative du phénomène est fournie par l'examen de la figure 32 ; elle montre les variations d'aspect de la région bombardée ; les temps de bombardement pour chaque photographie sont donnés et se rapportent à la période totale écoulée depuis la première photographie.

Au cours du bombardement l'aspect originel cristallin disparaît et *presque tous les détails s'arrondissent.* Les particules non seulement changent de forme, mais augmentent de taille et sont de moins en moins séparables les unes des autres.

La série de photographies précédente nous permet de nous faire une idée de la vitesse de dépôt sur les cristaux. L'accroissement, lent au

début, devient de plus en plus rapide : alors que le dépôt pendant les deux premières heures n'est que de 4 Å environ par minute, il atteint ensuite 10 Å par minute.

L'origine de cette croissance des cristaux semble être différente du phénomène analogue observé avec les électrons, phénomène d'ailleurs non entièrement expliqué (9). Dans notre cas l'explication



Fig. 32.

Légende : 1 : 0 heure, 2 : 2 heures, 3 : 3,15 heures, 4 : 6 heures.

immédiate est de voir ici un dépôt de lithium sur les cristaux. Ce phénomène est d'ailleurs apparent à un grandissement bien plus faible, les ions se condensant sur certaines surfaces métalliques en donnant un dépôt brun rougeâtre Ce dépôt peut être facilement observé sur la face supérieure de la grille porte-objet et sur la face supérieure de l'objectif, en dehors du champ, juste au-dessous de l'objet.

Nous venons de voir que la vitesse d'élargissement des cristaux est *voisine d'une couche atomique par minute.* Avec les intensités utili-

sées dans le canon, on s'attendrait à une augmentation beaucoup plus rapide. Le phénomène est donc en réalité plus compliqué :

— une infime partie seulement des ions reste fixée sur le cristal ; on a sans doute un équilibre entre le dépôt et l'émission secondaire d'ions sous l'effet du bombardement ionique ;

— le dépôt peut aussi être dû uniquement à une condensation de particules neutres : atomes alcalins neutralisés par le gaz résiduel, atomes évaporés de la source et entraînés par le faisceau ionique, atomes de nickel arrachés à la grille ou évaporés de celle-ci lorsqu'elle est portée à haute température par les ions interceptés.

Il serait utile d'étudier ce phénomène d'importance primordiale, en utilisant la diffraction électronique, et en comparant les résultats obtenus avec les protons et les autres ions alcalins.

CONCLUSION

I. — Alors que le MICROSCOPE ÉLECTRONIQUE classique est actuellement arrivé à un stade voisin de son perfectionnement optimum, nous montrons dans un premier chapitre, que l'emploi d'ions Li^+ de 50 kV offre une promesse de progrès importants, le pouvoir séparateur théorique étant porté à 0,5 Å. Les grandissements obtenus jusqu'ici dans les rares expériences réalisées avec les ions, ne dépassaient pas 5 000. Nous avons cherché l'origine de cet écart en étudiant le fonctionnement d'un même microscope électrostatique avec les particules des deux signes : électrons d'une part, ions Li^+ d'autre part.

II. — Nous avons utilisé un MICROSCOPE ÉLECTROSTATIQUE INDUSTRIEL ; la limite de résolution que l'on pouvait pratiquement obtenir à l'aide d'électrons avec cet appareil pour les objets (fumées de ZnO et MoO^3) qui devaient être utilisés lors du fonctionnement en microscopie ionique a été trouvée voisine de 35 Å, avec un objectif sans diaphragme et sans l'usage d'un correcteur d'astigmatisme. Avec les ions l'intensité lumineuse de l'écran fluorescent étant insuffisante pour permettre de régler un stigmateur, nous avons tout d'abord cherché à nous placer systématiquement dans les mêmes conditions lorsque l'appareil fonctionne avec des ions ou des électrons.

III. — Nous avons utilisé UNE SOURCE D'IONS SOLIDE (aluminosilicate alcalin synthétique porté à 1 200° C) semblable à celle proposée par Bainbridge en 1931 et dont récemment Couchet a entrepris une étude systématique. Notre source, de réalisation très simple, est constituée par un filament de tungstène plié en épingle à cheveux, à l'extrémité duquel se trouve une petite sphère de substance émissive.

Une étude de l'émission en fonction du temps nous a montré qu'après 15 minutes environ de fonctionnement, l'émission se stabilise avec une légère diminution, régulière pendant plusieurs heures (10 o/o de sa valeur par heure de fonctionnement). L'émissivité à 1 100° C est voisine de 0,2 mA/cm². Aucune influence des entrées d'air et aucun phénomène d'activation n'ont été observés.

L'expérience nous a montré dès les premiers essais que la simple inversion de la polarité de la haute tension d'accélération est tout à fait insuffisante pour obtenir des images ioniques ; de nombreux problèmes devaient être résolus avant de pouvoir obtenir des images à des grandissements élevés.

Nous avons réalisé un montage électrique permettant d'étudier en cours de fonctionnement les *propriétés focalisatrices du canon* dont était muni l'appareil primitif. Pour les ions Li^+, ces propriétés sont fort différentes de celles que l'on observe avec les électrons seuls ; cette différence est due au fait que la source d'ions émet simultanément les ions Li^+ utiles et des électrons parasites qui sont collectés par le wehnelt et troublent le fonctionnement normal de cette électrode.

Nous avons déterminé les conditions géométriques et électriques optima de fonctionnement. Nous avons en particulier constaté qu'une polarisation automatique par résistances est préférable à une polarisation par piles.

IV. — Les écrans fluorescents utilisés en microscopie électronique ne sont pas utilisables avec les ions. Nous avons préparé des écrans où une très fine couche de liant est recouverte d'une couche de produit fluorescent (sulfure de zinc).

Les produits employés actuellement sont cependant encore trop peu lumineux et ont une durée de vie trop courte. Leur qualité est un facteur décisif du succès et c'est elle qui limite en grande partie le pouvoir séparateur obtenu en rendant la mise au point difficile, en prohibant l'emploi du stigmateur, et en obligeant à utiliser des courants d'ions trop forts qui modifient la structure de l'objet de façon continue.

Nous avons utilisé des *plaques photographiques* à forte concentration en bromure d'argent. Mais les plaques disponibles actuellement ne sont pas adaptées à l'obtention d'images ioniques :

— les plaques Q rapides ont une granulation trop grande et manquent de contraste ;

— les plaques B 10 sont moins sensibles mais présentent une finesse de grain bien supérieure, permettant des agrandissements optiques de l'ordre de 10.

L'expérience nous a montré qu'un vide de 10^{-5} mm. Hg est nécessaire à l'intérieur de l'appareil pour obtenir des images présentant des résolutions élevées et un contraste suffisant.

V. — Tache centrale. — Nous avons étudié *le mode de formation de la tache centrale*, caractéristique de toute image ionique. Nous avons montré que son origine est double, une partie provenant de particules neutralisées dans le canon avant la traversée de l'objet et qui ont traversé les deux lentilles sans être focalisées ; l'autre partie prenant naissance par neutralisation du faisceau entre l'objectif et le projecteur.

Par action d'un champ magnétique, nous avons montré que, dans les deux cas, ces particules, non déviées par un champ électrostatique pouvaient être séparées sous l'action d'un champ magnétique en *une partie chargée et une partie neutre.* Cette action surprenante d'un champ magnétique sur un faisceau *a priori* neutre ne peut être expliquée que par l'hypothèse de « l'engagement » d'atomes dans le faisceau de particules neutres.

Des images parasites observées au cours de certains réglages nous ont montré que le faisceau d'ions est le siège d'une suite de *neutralisations et d'ionisations successives*, seuls les faisceaux intenses ainsi formés pouvant donner des images. Certains de ces faisceaux sont neutres sur une partie de leur trajet dans les champs électrostatiques de l'appareil. On a pu ainsi observer sur une même photographie, trois images de l'objet, ayant des grandissements différents.

VI. — Analyse du faisceau. — L'élucidation du mécanisme de formation de la tache centrale a rendu nécessaire une analyse précise en masses des divers ions émis par la source.

En abaissant le foyer du projecteur sur le plan d'observation, nous avons obtenu un spot de 0,1 mm. environ de diamètre. Par action d'un champ magnétique il nous a été possible d'analyser le faisceau d'ions, les déviations étant inversement proportionnelles à la racine carrée de la masse atomique. La résolution obtenue avec des moyens très rudimentaires est de 1/40.

Nous avons pu étudier ainsi directement les ions émis par la source solide utilisée ; nous avons trouvé à côté des ions principaux Li_6^+ et Li_7^+, les ions H_1^+, Na_{23}^+, K_{39}^+, K_{41}^+. Nous n'avons, par contre, pu déceler aucune trace de Rb^+ ou Cs^+, ainsi que d'ions ionisés plusieurs fois ou de molécules ionisées.

Cette méthode nous a permis de montrer l'existence en quantités très faibles d'*ions négatifs*, obtenus à partir de l'ion positif correspondant par double capture d'électrons. Nous avons observé H^-, Li_6^-, Li_7^- déjà indiqués en 1948 mais dans des conditions tout à fait différentes. Nous croyons avoir observé aussi Na^- et K^- dont l'existence théorique avait été mise en doute.

Des considérations énergétiques nous ont permis de calculer que le spectrographe de masse ainsi réalisé permet de déceler *une impureté à la concentration 10^{-8}* (correspondant à un courant de 10^{-17} ampères), les meilleurs appareils ultra-sensibles actuels ne permettant de

détecter qu'une concentration 100 fois plus grande environ. Une preuve directe de cette grande sensibilité a été fournie par l'observation dans une source de Na^+ très pure, avec seulement une pose de 10 secondes, d'ions Li^+, qu'un spectromètre classique n'avait pu détecter.

Outre l'utilisation de l'enregistrement photographique, cette sensibilité provient principalement de la méthode de focalisation qui concentre un courant très faible sur une surface extrêmement petite : l'intensité locale ainsi réalisée permet d'obtenir un effet détectable photographiquement.

VII. — Pouvoir de résolution obtenu avec les ions. — Nous avons obtenu un certain nombre d'images d'oxyde de zinc ou de molybdène à fort grandissement. Nous avons mesuré le pouvoir séparateur à l'aide de la méthode de la répartition lumineuse sur l'image d'une arête, seule méthode utilisable dans le cas des ions, les photographies ne présentant que des blancs et des noirs, puisque les cristaux utilisés sont opaques aux ions. *Le pouvoir de résolution pour les meilleures de ces photographies ioniques est voisin de 80 Å*, soit une valeur deux fois moins bonne que celle obtenue avec les électrons et le même appareil, mais environ 10 fois supérieure à celle obtenue par Boersch en 1942 avec des ions lithium.

La résolution obtenue est actuellement *limitée par l'objet*, le faisceau ayant sur celui-ci une triple action : il le détruit partiellement, fait vibrer certains cristaux et produit uniformément un dépôt.

Tout au cours de ces recherches, nous avons, après chaque résultat, présenté une étude critique des possibilités de l'appareil que nous avons utilisé. Il nous semble possible d'affirmer en conclusion de ces travaux, que le pouvoir de résolution que nous avons obtenu peut être considéré comme très voisin de la limite que l'on peut espérer d'un microscope de cette conception. Lors de recherches ultérieures il sera absolument nécessaire d'utiliser un appareil spécialement adapté à la focalisation des ions. Les problèmes techniques à résoudre seront nombreux. Il faudra notamment augmenter la sensibilité de l'écran fluorescent, pour que l'on puisse utiliser et régler un stigmateur avec des intensités plus faibles encore. Il sera aussi nécessaire d'éliminer entièrement les migrations mécaniques de l'objet et les dérives lentes de la haute tension de façon à permettre des poses photographiques de longue durée, à intensité réduite, ce qui ménagera l'objet. Ces difficultés expérimentales ne semblent pas insurmontables et de grands espoirs semblent permis, les résultats actuels étant encore inférieurs d'un facteur 100 à ceux prévus par la théorie.

(Travail effectué au Laboratoire de Radioélectricité de la Faculté des Sciences de Paris, à l'École normale supérieure, Professeur Grivet).

BIBLIOGRAPHIE

(1) Bainbridge. — *Journ. Frank Inst.*, 1931, **212**, 317.
(2) Blewett et Jones. — *Phys. Rev.*, 1936, **50**, 464.
(3) Boersch. — *Naturw.*, 1942, **30**, 74.
(4) Boersch. — *Phys. Zeit.*, 1943, **44**, 202.
(5) Boersch. — *Experientia*, 1947, **4**, 1.
(6) Bricka et Bruck. — *Ann. Radioélect.*, 1948, **3**, 339.
(7) Cartan. — *Ann. de Phys.*, 1938, **426**, 10.
(8) Chanson et Magnan. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **233**, 1436.
(9) Cosslet. — *Journ. App. Phys.*, 1947, **18**, 844.
(10) Couchet. — *C. R. Acad. Sc.*, 1953, **236**, 1240 ; *Ann. Phys.*, 1954, **9**, 731.
(11) Couchet, Gauzit et Septier. — *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1951, **233**, 1087.
Couchet, Gauzit et Septier. — *Bull. Micros. Appl.*, 1952 [2], **2**, 85.
(12) Duclaux et Jeantet. — *Journ. de Phys.*, 1921, **2**, 154.
(13) Gauzit. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **233**, 1586.
(14) Gauzit. — *Bull. Micros. Appl.*, 1953 [2], **3**, 58.
(15) Gauzit. — (à paraître).
(16) Grivet et Bruck. — *Ann. Radioëlect.*, 1946, **1**, 293.
(17) Grivet et Regenstreif. — Congrès de Micros. Électron., Paris, 1950.
(18) Henriot, Goche et Dony-Hénault. — *Journ. de Phys.*, 1931, **2**, 1.
(19) Huntley. — *Phys. Rev.*, 1927, **30**, 864.
(20) Inghram. — *Advances in Electronics* **1**, 250 ; *Academic Press*, 1948.
(21) Koch. — *Zeits. Phys.*, 1936, **100**, 669.
(22) Koch et Walcher. — *Zeit. Phys.*, 1935, **97**, 131.
(23) Knoll et Ruska. — *Zeit. Phys.*, 1932, **78**, 318.
(24) Kunsman. — *Phys. Rev.*, 1926, **27**, 249.
(25) Leisegang. — Congrès de Micros. Électron., Innsbruck, 1953.
(26) Magnan. — *Nucleonics*, 1949, **4**, 52.
(27) Magnan, Ertaud et Chanson. — *C. R. Acad. Sc.*, Paris, 1945, **220**, 770.
(28) Oliphant, Shire et Crowther. — *Proc. Roy. Soc.*, 1934, **146**, 922.
(29) Rebsch. — *Ann. Phys.*, 1938, **31**, 551.
(30) Richardson. — *Emission of electricity from hot bodies*, 1916.
(31) Sloane et Love. — *Nature*, 1947, **159**, 302.
(32) Sloane et Watt. — *Proc. Roy. Soc.*, 1948, **61**, 217.
(33) Von Ardenne. — *Electronen-Ubermikroskopie*, Berlin, 1940, 39.
(34) Walcher. — *Zeit. Phys.*, 1943, **121**, 604.

CONTRIBUTION A L'ÉTUDE DES SOURCES SOLIDES IONIQUES

APPLICATION A L'ÉMISSION ÉLECTRONIQUE SECONDAIRE ET A LA MICROSCOPIE IONIQUE PAR ÉMISSION [1]

Par Georges COUCHET

INTRODUCTION

Les sources d'ions positifs sont utilisées depuis longtemps dans de multiples domaines de la physique, mais leur étude s'est considérablement développée au cours des vingt dernières années pour répondre aux exigences des techniques de la physique nucléaire et de la spectrographie de masse. Ces sources fonctionnent sous une pression réduite comprise entre 10^{-1} et quelques 10^{-4} mm de Hg. Comme l'utilisation des ions se fait en général dans une enceinte où règne un vide très poussé, il est nécessaire de séparer la source de l'appareil utilisateur. Par ailleurs l'amélioration du rendement est souvent obtenue au prix de complications dans la réalisation des sources et d'une augmentation dans la dépense d'énergie électrique, ce qui présente de notables inconvénients car la source est presque toujours située du côté de la haute tension.

Signalons aussi que, sauf pour les sources modernes en haute fréquence, la coexistence d'ions de nature différente nécessite souvent l'emploi d'un séparateur magnétique intercalé entre la source et l'appareil d'utilisation. C'est pour éviter ces inconvénients que nous avons employé en microscopie ionique des sources solides qui présentent le triple avantage de pouvoir être utilisées directement dans des vides très poussés, d'avoir une structure remarquablement simple et un encombrement réduit au minimum et de ne nécessiter enfin qu'une faible dépense d'énergie électrique.

(1) Thèse présentée, le 10 juillet 1953, à la Faculté des Sciences de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences Physiques.

CHAPITRE PREMIER

L'ÉMISSION THERMOIONIQUE ET LA PRÉPARATION DES ALUMINO-SILICATES ALCALINS

L'émission thermoionique.

L'émission de particules électrisées par des substances portées à haute température est un phénomène très général dont l'importance théorique et technique est bien connue. Tandis que les métaux purs et les semi-conducteurs électroniques donnent surtout naissance à des émissions très importantes d'électrons, les électrolytes et en particulier les verres à base d'alumino-silicates alcalins peuvent donner des émissions d'ions des deux signes, l'émission d'ions positifs étant toutefois prépondérante.

Métaux purs. — Il est difficile de mettre en évidence des émissions d'ions de même nature que celle du métal chauffé. Smith (29) et Wahlin (32) ont montré que les métaux réfractaires comme le tungstène, le molybdène et le colombium émettaient des ions du métal correspondant à très haute température (2 500° K pour le tungstène). Il en est de même pour des métaux plus communs comme le fer, le nickel et l'argent qui émettent des ions positifs à une température très voisine de leur point de fusion, et alors que leur vitesse d'évaporation est déjà très appréciable. Dans tous les cas les courants sont très faibles et ces émissions sont inutilisables dans les sources d'ions.

Métaux impurs. — Lorsqu'on ne prend pas de précautions exceptionnelles, les métaux contiennent toujours des impuretés ; il est alors possible de mettre en évidence une émission positive à température beaucoup plus basse (à partir de 1 000° K) constituée par des ions de nature différente de celle du métal chauffé. Une étude systématique de Richardson (26) a démontré que les ions émis dans ces conditions étaient des ions alcalins, l'émission du potassium étant presque toujours supérieure à celle du sodium par suite de son potentiel d'ionisation inférieur. L'émission d'ions positifs décroît avec le temps suivant une loi exponentielle et sa variation avec la température peut être représentée par la formule suivante, analogue à celle de Richardson :

$$\iota = Af(T)e^{-\frac{\omega}{KT}}$$

dans laquelle la fonction $f(T)$ varie très peu en fonction de la température, le coefficient ω étant très inférieur à celui qui caractérise l'émission électronique.

Source de Kunsman. — La facilité avec laquelle les impuretés alcalines donnent naissance à une émission d'ions conduisit Kunsman (20) à la réalisation de sources solides d'ions dans lesquelles l'ion alcalin ou alcalino-terreux dont on recherche l'émission est ajouté en faible quantité (1 p. 100 environ), sous forme de phosphate ou de nitrate, à de l'oxyde magnétique de fer. Le tout, finement pulvérisé puis fondu dans l'azote, est ensuite disposé sur un ruban de platine. Après réduction de la couche complexe dans une atmosphère d'hydrogène, la source ainsi constituée peut émettre des courants d'ions de l'ordre de 10^{-4} amp/cm^2 pendant plusieurs heures. Ces sources ont été utilisées en particulier par Smythe et Hemmendinger (31) pour la séparation des isotopes de potassium.

Une source intense d'ions : les alumino-silicates naturels et artificiels.

L'émission ionique des sels binaires a été étudiée par Schmidt (28); elle est surtout importante pour les sels alcalins et alcalino-terreux qui cristallisent sous la forme d'un réseau ionique. Dans le cas des halogénures alcalins elle débute vers 700° K ; à une température plus élevée un même sel peut donner naissance à des ions positifs et à des ions négatifs, mais les courants sont de l'ordre de quelques microampères.

Il existe une classe particulièrement intéressante de sels dont l'émission ionique est très importante : ce sont les alumino-silicates alcalins. Murawkin (24), étudiant un certain nombre de verres entre 1 000° K et 1 500° K, avait mis en évidence des émissions de potassium et de sodium ; mais ces ions étaient toujours accompagnés d'autres ions provenant des constituants du verre (Be^+, Mg^+, Si^+), et d'oxygène sous la forme d'ions O^+, O^{++} et O_2^+. Les alumino-silicates naturels (Spodumène Li_2O, Al_2O_3, $4Sio_2$, Jadéite Na_2O, Al_2O_3, $4Sio_2$, Leucite K_2O, Al_2O_3, $4SiO_2$, Pollucite $2Cs_2O$, $2Al_2O_3$, $9SiO_2$, H_2O) ont été souvent employés en spectrographie de masse, mais à la suite des travaux de Jones et Hendricks (18) et de Blewett et Jones (6) on a préféré utiliser des produits synthétiques qui présentent une émission plus pure et plus régulière que les cristaux naturels.

Les alumino-silicates alcalins synthétiques permettent d'obtenir des intensités ioniques de l'ordre de 10^{-3} A/cm^2 par simple élévation de température. Nous avons pu les obtenir sous la forme de verres

homogènes se prêtant au polissage optique et présentant donc une surface émissive bien définie. Ils nous ont permis de réaliser des sources solides d'ions se prêtant particulièrement bien à la réalisation de canons d'ions pour l'étude de l'émission secondaire et pour la microscopie ionique par émission et par transmission.

Cristaux naturels susceptibles d'être utilisés comme sources d'ions.

Le tableau I donne la composition, le nom et le point de fusion des différentes espèces minérales à base d'alumino-silicates alcalins que l'on trouve dans la nature. Ces cristaux naturels comportent toujours 2, 4 ou 6 molécules SiO_2 (sauf la pétalite qui en contient 8). Certains d'entre eux comme le spodumène et l'eucryptite se présentent sous deux formes, la forme α stable à basse température et la forme β stable à haute température. La préparation de la forme α par voie synthétique a toujours échoué : lorsqu'on refroidit un verre dont la composition correspond à celle du spodumène c'est toujours la forme β qui cristallise. Les travaux de Blewett et Jones (6) ont montré que, pour les sels de lithium, c'est la composition contenant 2 molécules de SiO_2 qui donne l'émission ionique la plus intense. Ce sont des alumino-silicates alcalins de ce type que nous avons préparés par synthèse et qui nous ont servi comme sources d'ions pour l'étude de l'émission secondaire électronique sous l'impact d'ions positifs, pour l'étude au spectromètre de masse des sources solides ioniques et pour la microscopie ionique. Nous avons préparé également des sels synthétiques contenant 4 molécules de SiO_2 c'est-à-dire correspondant à la γ-leucite, à la jadéite et au β-spodumène.

Préparation des alumino-silicates alcalins au four à induction et au four solaire.

Nous avons choisi des matières premières aussi pures que possible et les premières fusions ont été réalisées avec un four à induction Ribaud. Par la suite nous avons utilisé le four solaire de 150 cm de diamètre qui a été mis aimablement à notre disposition par la Commission de l'Utilisation de l'Energie solaire en Algérie (9).

Matières premières utilisées. — L'*alumine* Baker utilisée était pure et correspondait à l'analyse suivante :

Cl.	0,002 p. 100
$S(So_4)$	0,005 p. 100
Métaux lourds (dosés comme Pb) .	0,002 p. 100
Fe	0,002 p. 100

TABLEAU I

Alumino-silicates alcalins naturels.

Composition	Nom	Point de fusion en °C	Référence
Li_2O, Al_2O_3, $2SiO_2$	Eucriptite	1 397 avec dissociation	HATCH. *The American Mineralogist*, 1943, 28, 471.
Li_2O, Al_2O_3, $4SiO_2$	Spodumène	1 423	
Li_2O, Al_2O_3, $6SiO_2$	Lithium orthoclase	—	
Li_2O, Al_2O_3, $8SiO_2$	Pétalite	950 avec dissociation	
Na_2O, Al_2O_3, $2SiO_2$	Néphéline	1 248	SCHAIRER et BOWEN. *American Journ Sci.*, 1947, 193 à 204.
	Carnegiéite	1 526	
Na_2O, Al_2O_3, $4SiO_2$	Jadéite	1 060	
Na_2O, Al_2O_3, $6SiO_2$	Albite	1 118	
K_2O, Al_2O_3, $2SiO_2$	Kaliophilite	1 750	SCHAIRER et BOWEN (même référence).
K_2O, Al_2O_3, $4SiO_2$	Leucite	1 686	
K_2O. Al_2O_3, $6SiO_2$	Feldspath orthose	1 150	

La *silice* « précipitée pure Prolabo » était calcinée à 800° et sa teneur en oxyde de fer Fe_2O_3 ne dépassait pas 0,02 p. 100.

Les sels alcalins étaient des produits purs Baker pour analyse. Le lithium et le potassium étaient introduits sous la forme de carbonate neutre, le sodium sous la forme de bicarbonate : ils correspondaient aux analyses suivantes :

	Carbonate de lithium	Bicarbonate de sodium	Carbonate de potassium
Cl	0,03 o/o	0,002 o/o	0,003 o/o
S(SO₄)	0,02 »	0,003 »	0,001 »
Métaux lourds (dosés comme Pb) . . .	0,001 »	0,001 »	0,0003 »
Autres alcalins. . .	0,14 » (de K et Na)	0,01 » (K)	0,02 » (Na)
Fe	0,002 »	0,0004 »	0,0004 »

La faible teneur en fer de ces matières premières a permis d'obtenir des sources solides ioniques dépourvues de toute coloration.

Pastillage. — Les produits étaient séchés pendant une douzaine d'heures à 150° et passés ensuite aux tamis n° 80 et n° 250. Le mélange des trois constituants était alors réalisé aussi intimement que possible, conformément à la formule du sel que l'on désirait préparer, en prenant pour chaque constituant des quantités égales de grains de chacune des deux grosseurs. La poudre obtenue, soigneusement homogénéisée, était alors pastillée sous la forme de cylindres de 60 mm de hauteur et de 24 mm de diamètre en prenant comme liant quelques centimètres cubes de benzine cristallisable. Le pastillage se faisait sous une pression de plusieurs tonnes par centimètre carré et la granulométrie adoptée assurait une bonne cohésion des cylindres. La densité du produit obtenu (variable suivant le sel alcalin) était comprise entre 1,5 et 2 et les cylindres étaient conservés dans un dessiccateur jusqu'au moment de leur fusion au four à induction ou au four solaire.

Fusions au four à induction. — Le creuset contenant le mélange à fondre est contenu dans un récipient cylindrique de graphite pur situé à l'intérieur d'un cylindre de silice fondue. Le tout est entouré de l'enroulement secondaire du four parcouru par le courant de haute fréquence. Un prisme P à réflexion totale permet de faire les pointés pyrométriques au moyen d'un pyromètre Ribaud à filament disparaissant qui permet de suivre à distance l'élévation de température du mélange à fondre (fig. 1).

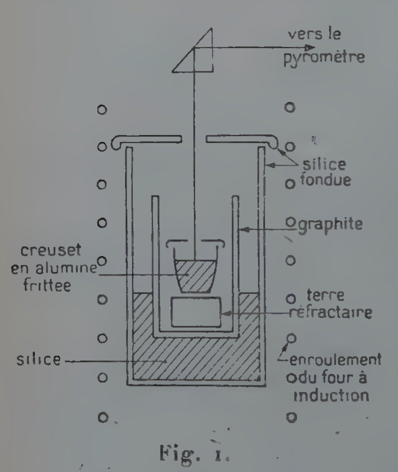


Fig. 1.

Ne pouvant disposer de creusets de platine, j'ai utilisé des creusets en terre réfractaire, en graphite pur et en alumine frittée. Les premiers sont trop fragiles et cassent presque toujours au cours de la fusion ou du refroidissement ; les creusets en graphite sont plus résistants, mais il est difficile d'éviter une contamination de la substance en fusion dont la coloration est altérée par la poudre de graphite. J'ai adopté en définitive les creusets en alumine frittée de la Maison Desmarquet, dont la tenue en cours de fusion est bonne et qui, en cas de réaction chimique avec le produit en expérience, présente l'avantage de ne pas apporter de substances étrangères à celles qui entrent dans la composition des alumino-silicates. La seule modification possible, résultant d'une réaction de la matière du creuset sur





Fig. 2.

Plaques et cylindres d'alumino-silicate de sodium obtenus au four à induction.

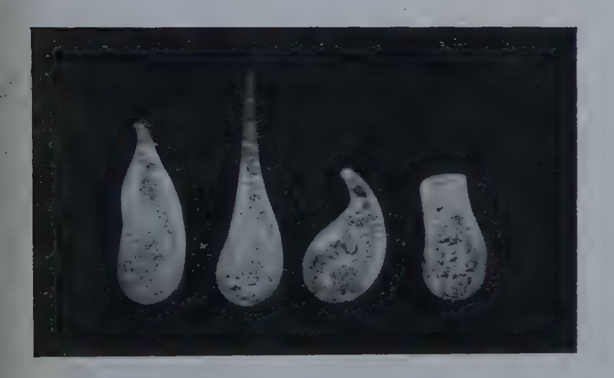


Fig. 4.

Sources solides sous forme de perles obtenues au four solaire.



Fig. 5.

Sources solides sous forme de fils obtenues au four solaire.

MASSON ET Cie, ÉDITEURS

les produits en fusion, est une légère variation de la teneur en silice qui n'a qu'une influence minime sur l'émission ionique. J'ai fabriqué aussi des creusets en magnésie par frittage de la poudre de magnésie, cuisson à 900° et usinage au tour, mais ces creusets se sont révélés inutilisables par suite de leur trop grande porosité à haute température.

L'utilisation de cylindres comprimés pour charger le creuset en une seule fois évite de procéder à plusieurs enfournements en cours de fusion. Une trentaine de fusions nous ont permis de préparer des alumino-silicates alcalins (Li, Na et K) synthétiques sous une forme mi-cristallisée mi-amorphe. La montée en température (jusqu'à une température supérieure de 50° C au point de fusion) se faisait en 2 heures environ ; à partir de 1 000° C se produit un dégagement de gaz (CO_2 et CO) formés par réaction de la silice sur le carbonate alcalin. Un palier de 30 min à 1 heure à une température nettement supérieure au point de fusion permettait de réaliser un affinage de la masse fondue. La température était abaissée ensuite rapidement (lorsqu'on voulait obtenir un verre) jusqu'à une centaine de degrés au-dessous du point de fusion, puis l'alimentation du four était coupée. Le mélange en expérience se refroidissait à l'intérieur du creuset, qui était perdu après chaque fusion. La trop grande viscosité des alumino-silicates fondus (même à 1 700° C) nous a empêché de couler les produits obtenus.

Les alumino-silicates de lithium se dévitrifient à la longue, tandis que ceux de potassium s'altèrent assez facilement. Par contre nous avons réussi plusieurs fusions de Na_2O, Al_2O_3, $2SiO_2$ qui ont donné un verre homogène et parfaitement transparent. Nous avons pu faire tailler dans la masse des sources ioniques larges sous forme de plaques rectangulaires de quelques centimètres carrés de surface et de 1 mm d'épaisseur, des cylindres de 5 mm de diamètre et de hauteurs variées à faces optiquement polies, ainsi que des lames minces de 5 mm de diamètre pour la microscopie ionique par émission (fig. 2). L'examen de ces produits au microscope polarisant, avec interposition d'une lame de gypse teinte sensible, n'a montré qu'une très faible biréfringence accidentelle non mesurable. Par ailleurs la détermination de l'indice de réfraction n_D, de la dispersion moyenne $n_F - n_C$ et de la densité d pour trois échantillons taillés dans cette source solide a donné les résultats suivants :

Echantillon	n_D	$n_F - n_C$	d
N° 1.	1,5132	0,00899	2,502
N° 2.	1,5137	0,00901	2,506
N° 3.	1,5139	0,00902	2,508

qui montrent que le produit est homogène et pourra servir à des déterminations physiques variées.

Préparation au four solaire. — L'utilisation du four solaire m'a permis de réaliser très facilement la fusion des alumino-silicates dans des conditions qui éliminaient toute contamination du mélange à fondre par des impuretés provenant du creuset, puisque ce dernier était supprimé.

La poudre, dont la composition correspond au sel triple dont on veut faire la synthèse, est pastillée sous la forme d'un cylindre compact, comme il a été indiqué ci-dessus. Ce cylindre est recuit vers 900° pendant 4 ou 5 heures afin d'augmenter sa dureté (ce qui permet de le manipuler plus facilement). L'une de ses extrémités est serrée (fig. 3) par le bouton B dans le mandrin en acier A solidaire d'un chariot qui permet de déplacer l'ensemble suivant l'axe optique du miroir. Un occulteur cylindrique O, ayant même axe que le cylindre à fondre, peut se déplacer par rapport à ce dernier. L'image solaire se forme sur la base du cylindre, mais sa surface étant inférieure à celle-ci la matière en fusion est entourée d'une enveloppe de produit non fondu formant creuset. Le réglage de la température se fait par défocalisation du cylindre et par déplacement de l'occulteur, ce dernier réglage permettant de modifier à volonté l'ouverture utile du faisceau réfléchi par le miroir.

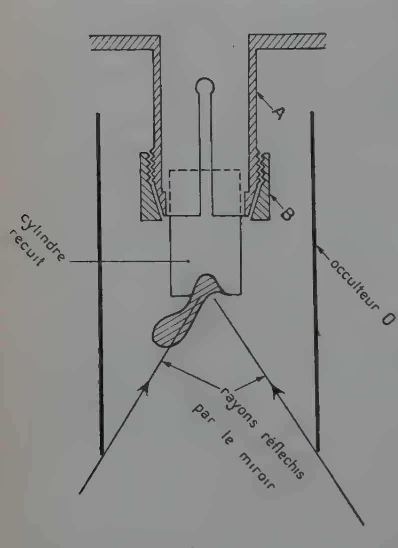


Fig. 3.

Ce mode de préparation permet d'obtenir à coup sûr des produits aussi purs que les matières premières mises en œuvre. Le verre formé prend la forme de gouttes (fig. 4) qui, en se détachant de la masse non fondue, permettent la fabrication de sources solides ioniques sous la forme de fils cylindriques ou légèrement coniques (diam. de quelques dixièmes de mm à 2 mm) (fig. 5) qui seront utilisés pour la réalisation de sources ioniques ponctuelles ou linéaires.

CHAPITRE II

ÉTUDE DE L'ÉMISSION IONIQUE GLOBALE DES SOURCES IONIQUES

L'installation de vide.

Cette installation, qui était primitivement destinée à l'étude de la pulvérisation cathodique, a été plusieurs fois modifiée pour l'adapter à différents usages, en particulier à la préparation de lames métalliques minces par évaporation thermique, à l'étude des phénomènes d'émission et d'optique ioniques et à des expériences d'engagement d'atomes dans les faisceaux d'électrons. La nécessité de l'utiliser à plusieurs fins m'a conduit à prévoir le raccordement possible de plusieurs appareils sur la même rampe de pompage.

Sous sa forme actuelle l'installation comprend :

1) Un groupe de pompage constitué d'une pompe préliminaire double à palettes, d'un réservoir de vide de 10 litres de capacité, d'une pompe à vapeur de mercure et d'une pompe à vapeur d'huile ; un piège à air liquide est interposé entre les deux pompes à diffusion.

2) Une rampe de pompage horizontale en acier étiré sans soudure (diamètre : 5 cm, longueur : 110 cm) qui comporte cinq branchements latéraux.

3) Deux tubes à décharge, placés l'un sur le vide préliminaire, l'autre sur le bon vide, une jauge thermocouple de Pirani et une jauge à ionisation, permettent d'effectuer les mesures de pression.

4) Une vanne à boisseau conique à large voie sépare la pompe à vapeur d'huile de la rampe de pompage et des robinets en verre rodés permettent d'isoler de la canalisation principale les appareils qui y sont reliés.

Préparation des surfaces émissives.

Pour étudier l'émission thermoionique des sources solides ioniques constituées par les alumino-silicates alcalins, il faut réaliser au préalable un dépôt de la substance active sur un métal support susceptible d'être porté à une température voisine du point de fusion de l'alumino-silicate. Jusqu'à 1 500° C, j'ai utilisé le platine qui résiste bien aux actions chimiques. J'ai également utilisé le molybdène et le tungstène en rubans de 4 à 8/100 de millimètre d'épaisseur ; ces deux

derniers métaux permettent d'atteindre des températures plus élevées mais sont plus facilement attaqués par les alumino-silicates.

La substance dont on veut étudier l'émission est d'abord finement broyée au mortier, puis porphyrisée. Elle est ensuite passée au tamis n° 250, ce qui permet d'obtenir des grains dont les plus gros ont 60 μ de diamètre. Pour assurer l'adhérence de la substance émissive sur le métal support, il est souvent nécessaire d'employer un liant. Toutefois lorsqu'il s'agit de préparer une source d'ions quasi ponctuelle (comme en microscopie ionique par transmission), on peut se contenter d'utiliser une pâte de la substance délayée dans très peu d'eau distillée, ce qui permet de réaliser facilement une petite boule émissive à l'extrémité d'un filament de tungstène ou de tantale.

Pour préparer des anodes émissives planes d'assez grande surface, j'ai utilisé des supensions de l'alumino-silicate dans l'acétate d'amyle ou de butyle, en ajoutant comme liant 5 o/o de collodion. Le dépôt de la substance peut se faire soit au pinceau, soit au pistolet. Dans la première méthode, il faut réaliser en une seule fois la couche d'épaisseur désirée, car l'application d'une nouvelle couche détruit partiellement les précédentes. L'utilisation du pistolet permet au contraire de mieux régler l'épaisseur de la couche, mais nécessite des quantités plus importantes de solution et entraîne une perte très importante de substance active, ce qui est très gênant lorsque cette substance est rare ou difficile à préparer. Après sa préparation, la lame est étuvée quelques heures à 110° C, puis placée dans un dessiccateur en attendant son utilisation. On réalise ainsi facilement des lames contenant des poids de substance active pouvant varier de 0,001 g à 0,2 g par centimètre carré, mais les dépôts sont granuleux et fragiles. J'ai obtenu aussi des dépôts plus réguliers et plus solides en utilisant les phénomènes d'électrophorèse suivant une technique qui sera décrite dans une autre publication.

Dispositifs expérimentaux.

Mes recherches sur l'émission des ions avaient primitivement pour but d'obtenir des faisceaux intenses d'ions pour étudier la pulvérisation cathodique et l'attaque des surfaces métalliques dans les vides poussés. C'est la raison pour laquelle j'ai choisi pour cette étude des électrodes planes et parallèles en utilisant d'abord une cloche à vide, qui permet de changer très facilement la surface émissive ainsi que la distance anode-cathode, puis une diode démontable en verre dont les paramètres géométriques étaient fixes *a priori* mais qui permettait d'opérer dans des vides plus poussés.

Cloche à vide. — Elle est représentée par la figure 6. La platine rodée qui la supporte comporte trois passages isolés et étanches : deux passages de forte section pour le chauffage par effet Joule de l'anode émissive A, le troisième étant utilisé pour le support qui maintient la cathode C et qui permet également de collecter le courant d'ions. La distance *d* de la cathode à l'anode est réglable de 0,5 cm à 3 cm. La quantité de chaleur dissipée par effet Joule étant notable j'ai disposé un manchon de verre M qui protège la cloche, ainsi qu'un réflecteur métallique R qui atténue l'échauffement possible des joints. Dans le cas des forts chauffages une canalisation circulaire *t* projette de l'air comprimé sur le rodage afin d'éviter un échauffement qui serait nuisible à l'obtention d'un bon vide. L'anode peut se changer facilement et son recouvrement par la substance émissive peut se faire par un des trois procédés indiqués plus haut.

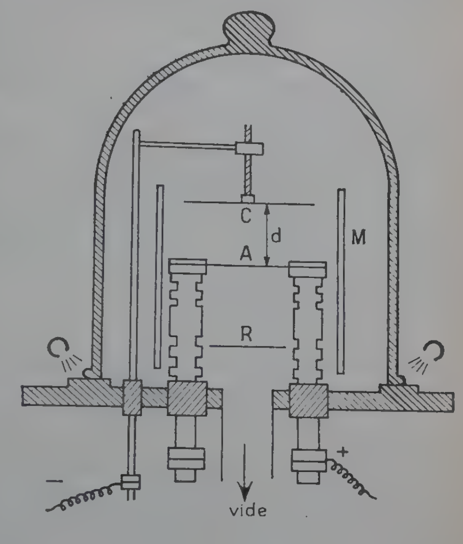


Fig. 6.

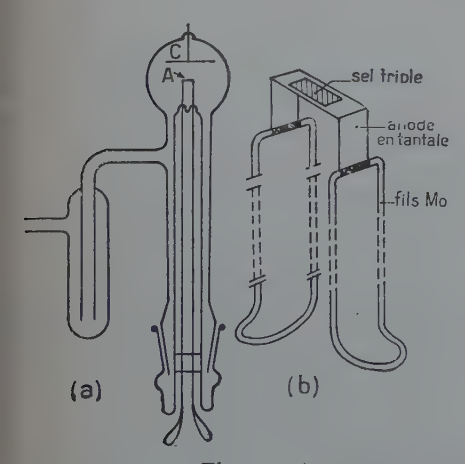


Fig. 7.

Diode. — Entièrement construite en pyrex (fig. 7 *a*) elle est constituée d'une enveloppe sphérique de 10 cm de diamètre au sommet de laquelle est soudée une cathode plane en molybdène de 4 cm de diamètre. Un tube de 5 cm de diamètre et de 17 cm de longueur, raccordé à l'ampoule, porte à sa partie inférieure un rodage mâle ; sur la partie

femelle de ce rodage est soudé un long tube de pyrex qui supporte l'anode et à l'intérieur duquel passent les fils de chauffage. L'anode est constituée par une feuille de tantale (largeur 5 mm, épaisseur 5/100 mm) recourbée comme l'indique la figure 7 *b* ; la partie plane parallèle à la cathode a 12 mm de long. La feuille constituant l'anode est soudée électriquement aux fils de molybdène de 15/10 de millimètre qui servent à la fois de support et d'arrivée pour le courant de chauffage. L'éloignement du rodage évite tout échauffement de la graisse ; le pompage de la diode se fait par une tubulure latérale reliée à la rampe de pompage par un piège à air liquide. L'anode étant difficilement remplaçable, le dépôt de la surface émissive se fait au pinceau ou au pistolet. La pression au cours du tracé des caractéristiques était maintenue à 5.10^{-6} mm de Hg.

Résultats concernant l'émission ionique des alumino-silicates alcalins.

Bien que les alumino-silicates naturels ou synthétiques aient été souvent utilisés en spectrographie de masse comme sources d'ions, on ne trouve dans la littérature que peu de renseignements concernant les variations de l'émission ionique en fonction de la température et de la tension accélératrice. Bainbridge (1) utilisant un spodumène naturel pour la détermination du rapport $\frac{Li_7}{Li_6}$ donne les valeurs du courant ionique qu'il obtient pour trois températures seulement et pour des tensions accélératrices de 600 et 700 volts. Blewett et Jones (7) concluent, d'une étude comparée des différents alumino-silicates synthétiques de lithium, que c'est le ternaire Li_2O, Al_2O_3, $2SiO_2$ qui présente l'émission la plus forte entre 980° C et 1 120° C ; ces auteurs utilisent un potentiel accélérateur fixe de 1 500 volts et trouvent un travail d'extraction de 4 volts environ qui serait le même pour tous les alumino-silicates et qui diminuerait avec le temps pour atteindre 2,70 volts (dans le cas du β-eucryptite) lorsque 60 p. 100 du lithium ont été émis sous forme d'ions. Etant donné la masse importante des particules émises (par comparaison avec la masse des électrons) il est à prévoir que les phénomènes de charge d'espace ont une grande importance dans le cas de l'émission ionique. J'ai donc repris l'étude de l'émission des alumino-silicates en étendant les mesures jusqu'à 1 300° C et en étudiant l'influence de la tension sur les courants collectés.

Ions lithium. — Une étude préliminaire, faite au moyen de la cloche à vide et portant sur l'émission du sel Li_2O, Al_2O_3, $4SiO_2$ (correspondant au β-spodumène naturel) a montré que l'émission était limitée

par les phénomènes de charge d'espace (10). La distance anode-cathode était de 2 cm et la surface émissive était constituée par une lame de tungstène de 5/100 de millimètre d'épaisseur, de 58 mm de longueur et de 8 mm de largeur : elle était recouverte de la substance émissive sur 43 mm de longueur ce qui correspondait à une surface de 3,45 cm². La figure 8 donne les caractéristiques d'émission pour les tempéra-

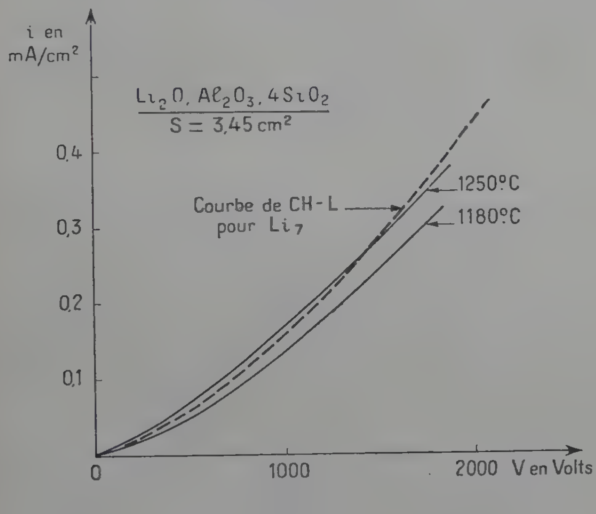


Fig. 8.

tures de 1 180° C et 1 250° C ; elles ne montrent aucun effet de saturation pour une tension accélératrice de 2 000 volts. Nous savons que le courant maximum (limité par la charge d'espace) que l'on peut recueillir dans une diode constituée de deux électrodes planes, parallèles et indéfinies, est donné par la formule de Child-Langmuir :

$$i_c = \frac{\sqrt{2}}{9\pi}\sqrt{\frac{e}{m}}\,\frac{V^{3/2}}{d^2}$$

dans laquelle V représente la tension appliquée entre électrodes, d la distance des électrodes et $\frac{e}{m}$ la charge spécifique des particules électrisées qui transportent le courant. Cette formule n'est applicable que si la température est assez élevée pour que le vrai courant de saturation i_s correspondant soit supérieur au courant i_c limité par la charge d'espace. Nous supposerons par ailleurs que les ions émis par effet thermoionique à partir des alumino-silicates ne portent qu'une seule charge élémentaire, ce qui sera confirmé par l'étude des sources

solides au spectrographe de masse. Dans ces conditions la formule peut s'écrire :

$$i_c = 5{,}43 \cdot 10^{-8} \cdot \frac{V^{3/2}}{d^2} \cdot \frac{1}{\sqrt{M}}$$

dans laquelle i_c est exprimé en A/cm², V en volts, d en centimètres et M en unités de masse atomique. On voit que, toutes choses égales d'ailleurs, les courants électroniques et ioniques limités par la charge d'espace sont inversement proportionnels à la racine carrée du rapport des masses de l'électron et de l'ion considéré :

$$\frac{(i_c)_{\text{ion}}}{(i_c)_{\text{électron}}} = \sqrt{\frac{m_{\text{électron}}}{m_{\text{ion}}}} \sim \frac{2{,}33 \times 10^{-2}}{\sqrt{M}} .$$

Le tableau II résume les valeurs des intensités i_c pour les électrons, les ions Li_7, Na_{23} et K_{39} pour les conditions expérimentales correspondant à nos expériences. Bien que la formule de Child-Langmuir ne soit pas applicable en toute rigueur à nos mesures, nous avons représenté en trait discontinu sur la figure 8 la courbe déduite du tableau II dans le cas où $d = 2$ cm et nous constatons que l'émission est bien limitée par la charge d'espace.

Tableau II

I^c \ V en volts		100	500	1 000	2 000
$d = 0{,}6$ cm	e−	6,5 mA	72,8 mA	205 mA	582 mA
	Li_7	57,2 μA	640 μA	1,81 »	5,11 »
	Na_{23}	31,6 »	355 »	1,00 »	2,83 »
	K_{39}	24,3 »	272 »	768 μA	2,17 »
$d = 1{,}5$ cm	e−	1,04 mA	11,6 mA	32,8 mA	93,0 mA
	Li_7	9,1 μA	102 μA	299 μA	820 μA
	Na_{23}	5,07 »	56,8 »	160 »	453 »
	K_{39}	3,89 »	43,6 »	123 »	348 »
$d = 2$ cm	e−	585 μA	6,55 mA	18,5 mA	52,3 mA
	Li_7	5,15 »	57,7 μA	163 μA	461 μA
	Na_{23}	2,84 »	31,8 »	89,5 »	254 »
	K_{39}	2,19 »	24,5 »	69,3 »	196 »

J'ai repris le tracé des caractéristiques d'émission en rapprochant les électrodes ($d = 0{,}6$ cm). La lame support était recouverte de substance active sur une surface de 5 mm × 20 mm ce qui permettait

d'obtenir directement l'intensité ionique par centimètre carré. Les courbes des figures 9 et 10 résument les résultats obtenus pour les

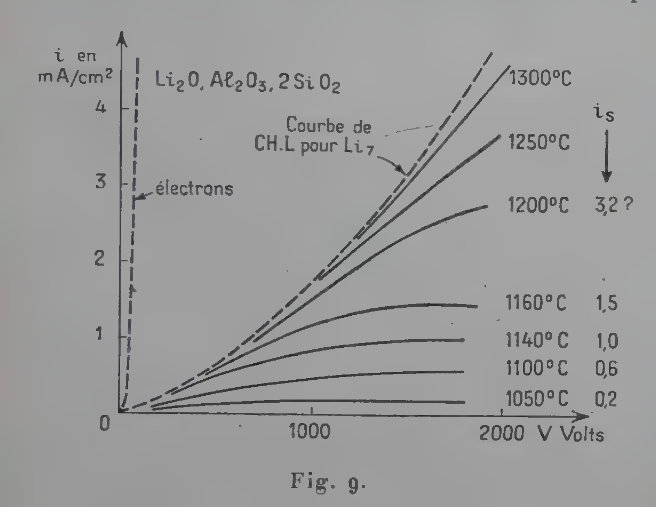


Fig. 9.

Fig. 10.

deux alumino-silicates qui présentent l'émission la plus importante et elles permettent de faire les remarques suivantes :

a) Pour les températures inférieures à 1 200° C il est possible d'obtenir pour les deux sels les courants de saturation, mais il faut appliquer des tensions élevées et la saturation est d'autant plus difficile à obtenir que la température est plus élevée. Pour des tempéra-

tures supérieures, les tensions dont je disposais ne permettaient pas d'obtenir la saturation et les courants étaient limités par la charge d'espace. Lorsqu'on se rapproche du point de fusion l'émission augmente mais devient irrégulière et il est difficile d'obtenir un tracé correct d'une courbe d'émission.

b) Les courbes en trait discontinu traduisent la formule de Child-Langmuir dans le cas considéré et confirment la limitation des courants par charge d'espace dans la zone des faibles tensions accélératrices. A titre d'indication j'ai représenté en pointillé la courbe de Child-Langmuir pour les électrons.

c) Pour une température donnée l'émission du sel Li_2O, Al_2O_3, $2SiO_2$ est nettement supérieure à celle de Li_2O, Al_2O_3, $4SiO_2$, ce qui confirme

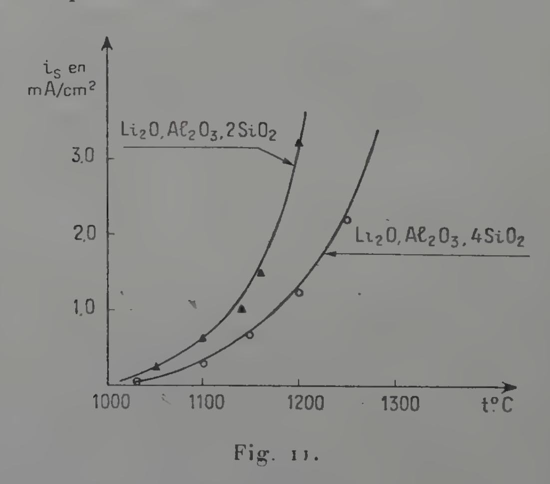


Fig. 11.

les résultats de Blewett et Jones. La figure 11 résume les variations des courants de saturation en fonction de la température pour ces deux sels de lithium.

Sodium et potassium. — J'ai fait une étude comparative rapide de l'émission des trois sels triples R_2O, Al_2O_3, $2SiO_2$ ($R = Li$, Na ou K) en utilisant la diode précédemment décrite pour laquelle $d = 1{,}5$ cm. Les courbes ont été tracées pour les températures de 1 100° C (points représentés par des Δ) et de 1 200° C (points représentés par des o) (fig. 12). L'émission semble décroître avec la masse atomique, mais la position des points expérimentaux par rapport aux courbes de Child-Langmuir relatives aux trois types d'ions montre bien que ce n'est qu'une apparence et que c'est la charge d'espace qui limite en fait l'émission. Des expériences sur l'étude de l'émission des sources solides faites au spectrographe de masse montreront au contraire que,

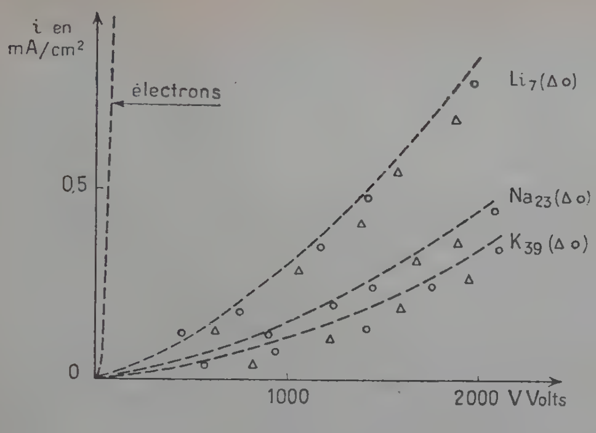


Fig. 12.

dans le cas des courants très faibles, les ions potassium et sodium sont émis plus facilement que les ions lithium, même lorsqu'ils n'existent qu'à l'état d'impuretés dans une source solide dont l'ion principal est le lithium.

La formule de Richardson dans le cas de l'émission ionique.

On peut traduire les résultats expérimentaux représentant les variations du courant de saturation ionique i_s en fonction de la température par une formule du type de Richardson-Dushman :

$$i_s = AT^2 e^{-\frac{b}{T}} .$$

Supposons, par analogie avec ce qui se passe dans l'émission électronique, que le facteur b puisse se mettre sous la forme $b = \frac{\varphi}{k}$, φ ayant les dimensions d'une énergie et k représentant la constante de Boltzmann. Bien que le processus d'extraction des ions à partir d'une surface complexe soit certainement différent de celui qui régit la sortie des électrons à travers une surface métallique, il est satisfaisant de constater qu'une même formule peut représenter les deux phénomènes puisqu'elle représente aussi (à l'exposant du facteur T^2 près) l'évaporation d'une substance solide ou liquide (33).

Smith (30) et Barnes (2) ont étudié l'émission des ions de molybdène et Moon (23) ceux du tungstène. Ces auteurs ont constaté que la variation de l'émission ionique en fonction de la température était

bien représentée par un terme exponentiel en $e^{-\frac{b}{T}}$. Les courbes de la figure (13) traduisent nos résultats expérimentaux relatifs aux deux alumino-silicates de lithium, en portant $-\mathrm{Log}_e \frac{i_s}{T^2}$ en ordonnées et $\frac{10^4}{T}$ en abscisses. Pour chaque sel triple les points sont sensiblement alignés sur des droites parallèles, ce qui confirme bien que l'émission ionique est régie par une loi analogue à celle de Richardson-Dushman. C'est à mon avis la seule conclusion que l'on peut tirer de ces mesures, car l'interprétation des coefficients A et b dans le cas des ions est très difficile.

On peut poser $\varphi = eV_g$, V_g ayant les dimensions d'un potentiel; mais cette grandeur ne peut être assimilée à un potentiel de sortie comme on le fait dans le cas de l'émission électronique. L'émission des ions positifs à partir de la surface de l'alumino-silicate est sans doute l'aboutissement de processus successifs parmi lesquels on doit envisager une électrolyse au sein de l'alumino-silicate, une diffusion à travers la masse du verre et enfin l'émission proprement dite à partir de la surface. Les caractéristiques de ces phénomènes élémentaires sont fortement influencées par la température et ce sont leurs variations globales qui sont exprimées par le terme exponentiel.

Des courbes de la figure 13 nous pouvons cependant déduire une valeur moyenne de b qui est 34000, correspondant à une valeur

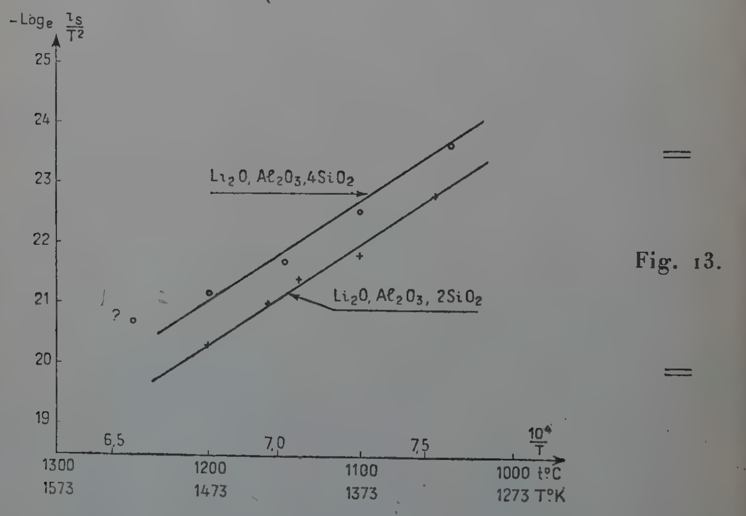


Fig. 13.

moyenne $V_s = 2{,}9$ volts sans attacher à ces valeurs d'autre signification que celle de constantes empiriques caractérisant l'émission d'ions Li^+ à partir des alumino-silicates de lithium que nous avons utilisés.

En réalité l'émission ionique des deux alumino-silicates est également conditionnée par les valeurs de la constante A. On trouve $A = 17,0$ pour le sel Li_2O, Al_2O_3, $2SiO_2$ et $A = 7,1$ pour l'autre, ce qui permet de traduire l'émission ionique, dans le cas de mes expériences, par les formules suivantes :

$$i_s = 17,0 . T^2 . e^{-\frac{34\,000}{T}} \text{ pour } Li_2O, Al_2O_3, 2SiO_2$$

$$i_s = 7,1 . T^2 . e^{-\frac{34\,000}{T}} \text{ pour } Li_2O, Al_2O_3, 4SiO_2.$$

Il ne faut pas être étonné des valeurs très différentes de la constante A pour l'émission d'un même ion Li^+ à partir de deux alumino-silicates de composition différente. Le déplacement des ions Li^+ dans le réseau cristallin du verre est une étape nécessaire qui précède l'émission ; la mobilité dépend évidemment de la structure du réseau, qui est mal connue à l'heure actuelle, mais qui est certainement en liaison étroite avec le nombre de molécules de silice, facteur essentiel de la structure des alumino-silicates. D'ailleurs si l'on rapproche ce résultat des valeurs de la constante A caractérisant l'émission électronique on constate que si pour les métaux purs les valeurs de A sont comparables, on passe de la valeur $A = 60,2$ pour le tungstène pur à la valeur $A = 3$ pour le tungstène thorié, alors que les différentes cathodes à oxyde avec support de tungstène sont caractérisées par des valeurs de A, très variables avec les conditions de préparation des couches qui oscillent entre 0,01 et 0,001.

Il convient encore de souligner une différence essentielle entre les émissions ioniques et électroniques. L'émission d'électrons à partir d'un métal pur ou d'une couche d'oxyde ne correspond pas à un transport de matière et par suite ne change pas la composition et la structure de la substance émissive. Dans le cas des ions, au contraire, la substance active s'appauvrit en ions alcalins au fur et à mesure que l'émission se poursuit, ce qui entraîne une modification continue de sa composition pondérale. Considérons par exemple une surface de 1 cm^2 recouverte de 0,1 g de Li_2O, Al_2O_3, $2SiO_2$ et émettant un courant d'ions positifs de lithium simplement chargés d'intensité 200 μA pendant 1 heure. Cette émission correspond à un transport d'une quantité d'électricité de 0,72 coulomb et par suite à une perte de lithium de $0,52 . 10^{-4}$ g. La substance contenant initialement $55 . 10^{-4}$ g de lithium, on voit qu'au cours de cette émission 1 p. 100 environ du lithium aura été émis à l'état d'ions.

Si l'on veut obtenir des résultats sûrs et reproductibles concernant l'émission ionique d'une substance il faudra donc utiliser des intensités très faibles ce qui présentera le double avantage de s'affranchir des effets de la charge d'espace et de supprimer les variations continues de la composition de la substance émissive en cours d'émission.

Par contre l'obtention des courants ioniques intenses qui faisait l'objet des expériences résumées dans ce chapitre montre qu'il est facile d'obtenir des intensités ioniques de plusieurs mA/cm² ce qui peut être très utile dans de nombreuses applications et plus particulièrement dans des expériences de séparation d'isotopes qui mettraient en œuvre les techniques que Pierce a mises au point pour focaliser les faisceaux intenses d'électrons. C'est une étude à laquelle nous pensons consacrer ultérieurement une partie de nos efforts.

CHAPITRE III

L'ÉMISSION SECONDAIRE ÉLECTRONIQUE DE QUELQUES MÉTAUX SOUS L'IMPACT D'IONS POSITIFS DE LITHIUM

INTRODUCTION

Le choc d'un ion positif sur une surface métallique (cible) donne lieu à des phénomènes complexes parmi lesquels on peut citer :

1) l'émission électronique secondaire vraie,
2) la réflexion d'une partie des ions incidents,
3) l'émission par la surface d'atomes ou de groupes d'atomes, chargés ou non, constituant les particules de pulvérisation cathodique,
4) la capture d'un électron avec formation d'un atome neutre,
5) la capture de deux électrons avec formation d'ions négatifs.

Dans les conditions expérimentales de cette étude, et en particulier avec les faibles intensités d'ions utilisés, la pulvérisation cathodique de la cible est toujours négligeable. Comme nous avons montré par ailleurs (11) que les particules de pulvérisation cathodique sont vraisemblablement formées par des agglomérats d'un grand nombre d'atomes ne portant qu'une charge élémentaire, il en résulte que l'existence de ce phénomène accessoire n'a qu'une influence très minime sur la valeur des intensités de courant collectées. Les deux derniers processus (formation d'atomes neutres et d'ions négatifs) n'interviennent que dans des cas très particuliers, et nous n'étudierons ici que l'émission électronique vraie et la réflexion des ions incidents par la cible.

Nous désignerons par γ le *coefficient d'émission secondaire* (rapport du nombre d'électrons émis au nombre d'ions incidents) et par F le *coefficient de réflexion* des ions (rapport du nombre d'ions positifs réfléchis au nombre d'ions incidents).

La plupart des expérimentateurs ont utilisé des ions dont l'énergi ne dépassait pas quelques kilovolts ou était supérieure à 100 kilovolts e domaine des énergies intermédiaires compris entre 2 et 100 KeV

été à peine exploré. Il est pourtant intéressant pour plusieurs raisons. En premier lieu on doit s'attendre à trouver un maximum de γ pour cette région intermédiaire, puisque l'émission secondaire est une fonction toujours croissante de l'énergie des ions pour les énergies inférieures à 2 000 eV et que plusieurs auteurs ont montré qu'au delà de 100 KeV le rendement γ diminuait souvent lorsque l'énergie des ions continuait à croître. Par ailleurs certains phénomènes rencontrés au cours de l'utilisation des ions alcalins en microscopie corpusculaire électrostatique nous ont conduit à étudier l'émission secondaire dans ce domaine des énergies intermédiaires. Les résultats que nous décrivons ci-après sont relatifs à une première phase de cette étude qui correspond à des énergies comprises entre 2 000 et 13 000 électron-volts.

Dispositif expérimental.

Nous nous sommes placé dans des conditions aussi proches que possible de celles que l'on rencontre en microscopie ionique.

La source d'ions. — Elle est constituée par un filament F de tantale ou de tungstène, de 9/100 à 15/100 de millimètre de diamètre, recourbé en forme de V et portant à son extrémité une petite boule de la substance qui émet des ions. Cette dernière a été obtenue en déposant sur la pointe du V une très faible quantité du sel triple Li_2O, Al_2O_3, $2SiO_2$ préparé au four solaire et humidifié avec un peu d'eau ou d'une solution de collodion dans l'alcool isoamylique. Un préchauffage sous vide assure l'adhérence de la matière active sur le fil. Le filament est alimenté par un accumulateur de 4 volts ; un rhéostat permet de régler l'intensité qui le traverse à une valeur convenable. Un wehnelt W, dont la position peut être réglée par rapport au filament, est porté à un potentiel positif réglable par rapport à ce dernier, ce qui permet de modifier l'ouverture du faisceau d'ions émis par la source. On dispose donc de deux réglages (intensité du courant qui traverse le filament et potentiel du wehnelt) pour modifier à volonté l'intensité du courant d'ions qui tombe sur la cible. L'accumulateur, le rhéostat, les piles de polarisation et le potentiomètre de réglage sont disposés sur un bâti isolant porté à la haute tension. Le filament lui-même est porté par un support de filament en stéatite dont les deux broches s'adaptent à deux bornes de nickel traversant un pied pressé ; une troisième borne permet d'appliquer la tension de polarisation au wehnelt grâce au ressort *r* (fig. 14). L'ensemble de la source d'ions est fixé à un bouchon isolant, traversé par trois bornes, qui obture l'orifice supérieur d'une cloche à vide montée sur un banc de pompage. Un ensemble constitué par une pompe préli-

minaire à palette suivie d'une pompe à diffusion à vapeur de mercure, avec piège à air liquide, permet de maintenir dans la cloche une pression de 10^{-5} mm de Hg.

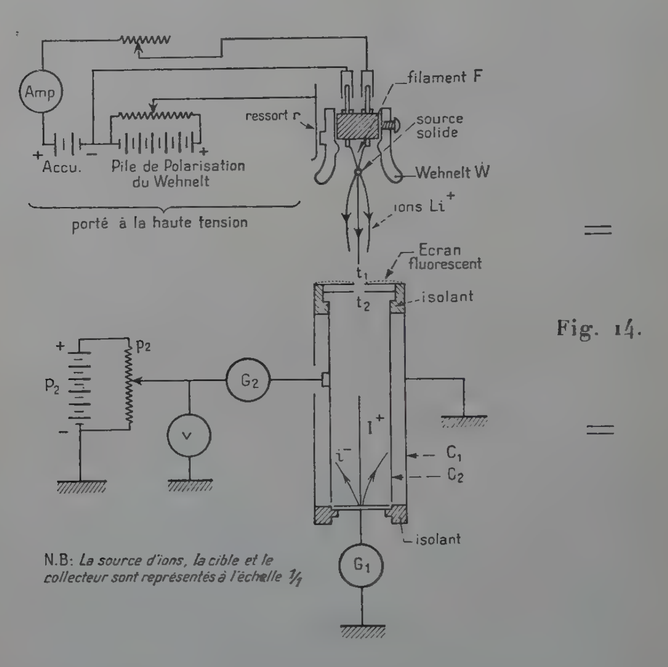


Fig. 14.

Cible et collecteur. — La cible est une rondelle du métal étudié (diamètre = 20 mm, épaisseur = 1 mm). Elle a été soigneusement nettoyée puis polie à l'émeri et à l'alumine dans les mêmes conditions que les électrodes des lentilles électrostatiques. Elle est supportée par une bague isolante fixée au fond du cylindre C_1 relié à la terre et jouant le rôle de cage de Faraday. Les électrons secondaires ou les ions réfléchis sont recueillis par un deuxième cylindre collecteur C_2 (diamètre = 20 mm, hauteur = 70 mm) isolé du premier et percé à sa partie supérieure d'un trou circulaire t_2 (diamètre = 3 mm). Le trou circulaire t_1 a un diamètre inférieur à celui de t_2 de façon que le faisceau d'ions ne puisse toucher les bords de l'orifice d'entrée dans le collecteur. L'ouverture du faisceau d'ions et les dimensions des cylindres sont choisies de telle sorte qu'aucun ion ne peut tomber directement sur une partie quelconque de C_2. L'angle solide sous lequel le trou t_2 est vu d'un point de la cible est suffisamment petit (10^{-3} stéradian) pour qu'on puisse négliger la fraction d'électrons secondaires ou d'ions réfléchis qui pourraient ressortir du collecteur.

La partie supérieure du cylindre C_1 est recouverte d'une substance fluorescente qui permet de vérifier que le faisceau d'ions est bien centré par rapport aux cylindres.

Circuit de mesure. — La cible est reliée à la terre par l'intermédiaire d'un galvanomètre G_1. Si I est l'intensité du courant d'ions tombant sur la cible et i l'intensité du courant d'électrons recueillis par le collecteur, l'intensité du courant traversant G_1 sera $I + i$. Le collecteur est porté à un potentiel variable v par rapport à la cible à l'aide des piles P_2 et du potentiel p_2. Le courant i est mesuré par le galvanomètre G_2.

Marche d'une expérience.

Après avoir allumé le filament et appliqué la tension d'accélération des ions on choisit une polarisation du wehnelt convenable pour obtenir sur la cible l'intensité désirée, le potentiel v étant égal à zéro. Au bout de quelques minutes l'émission secondaire se stabilise ce qui se traduit par la constance des indications de G_1 et G_2. On trace alors les deux courbes donnant i et $I + i$ en fonction de v.

Les électrons secondaires possèdent un spectre d'énergie qui s'étend de zéro à quelques dizaines de volts. Pour faire une mesure correcte de γ il faut être sûr que tous les électrons secondaires sont recueillis par le collecteur, ce qui est obtenu lorsque i devient indépendant de v. La courbe de la figure 15 représente les variations de i en fonction

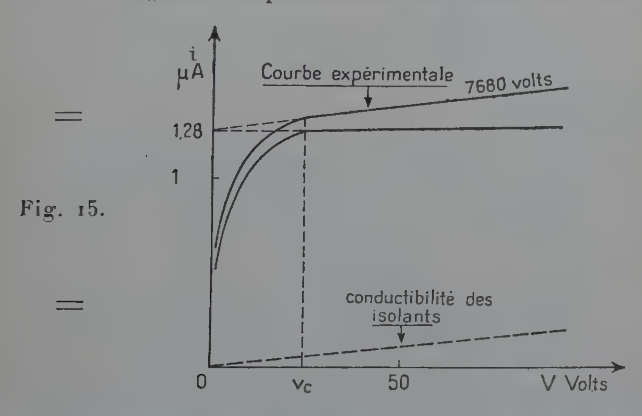


Fig. 15.

de v pour une cible d'acier inox bombardée par des ions Li^+ de 7 680 volts. Nous voyons qu'après une montée assez rapide la courbe présente une partie parfaitement rectiligne pour $v > v_c$. Au-dessus de cette valeur tous les électrons secondaires sont collectés et la partie rectiligne serait horizontale si le cylindre intérieur était parfaite-

ment isolé. En réalité les isolants qui supportent la cible et qui séparent les deux cylindres présentent une légère conductibilité qui a été mesurée dans une expérience « à blanc » dans laquelle les conditions expérimentales étaient identiques à la seule différence que la température du filament était insuffisante pour que l'émission d'ions soit décelable. Dans ces conditions la conductibilité des isolants est représentée par la courbe en pointillé, qui est parallèle à la partie rectiligne de la courbe expérimentale. Il est facile de voir que pour obtenir le vrai courant de saturation i_m il suffit d'extrapoler la partie rectiligne de la courbe expérimentale pour $v = 0$. Dans le cas de la figure on trouve 1,28 μA.

La courbe donnant les variations de $I + i$ en fonction de v présente une première portion ascendante qui correspond aux variations de i par suite de la collection progressive des électrons secondaires; pour $v > v_c$ la courbe présente une partie rectiligne et horizontale dont l'ordonnée est $(I + i)_m$. On trouve dans le cas de la figure $(I + i)_m = 2{,}86$ μA. Par suite $I = 1{,}58$ μA et $\gamma = 0{,}81$ (fig. 16).

En traçant les deux courbes précédentes pour chaque valeur de l'énergie des ions incidents on peut déterminer les différentes valeurs de γ et tracer la courbe $\gamma = f(V)$ donnant les variations de l'émission secondaire en fonction de l'énergie des ions.

Les figures 17 et 18 donnent à titre d'exemple les réseaux de courbes permettant le calcul de γ dans le cas de l'acier inox.

On a évidemment intérêt à éviter les phénomènes de charge d'espace au voisinage de la cible et à obtenir la saturation pour un champ accélérateur aussi faible que possible. Les courants utilisés doivent donc être faibles. Dans nos expériences l'intensité du faisceau d'ions incidents est restée comprise entre quelques dizièmes de microampère et 15 microampères.

L'impact du faisceau d'ions sur la cible laisse une trace visible ; on vérifie après l'expérience que la surface de cet impact ne recouvre que la partie centrale de la cible afin d'être sûr qu'aucun ion n'a pu atteindre directement C_2.

Influence de l'intensité du faisceau d'ions.

Il n'était pas sûr, *a priori*, que le coefficient d'émission secondaire soit indépendant de l'intensité du faisceau d'ions. Nous avons donc fait sur une cible (molybdène) des mesures de γ en faisant varier I dans d'assez larges limites. Les mesures ont été faites pour trois énergies différentes : 2 160, 6 490 et 10 820 volts. L'ensemble des

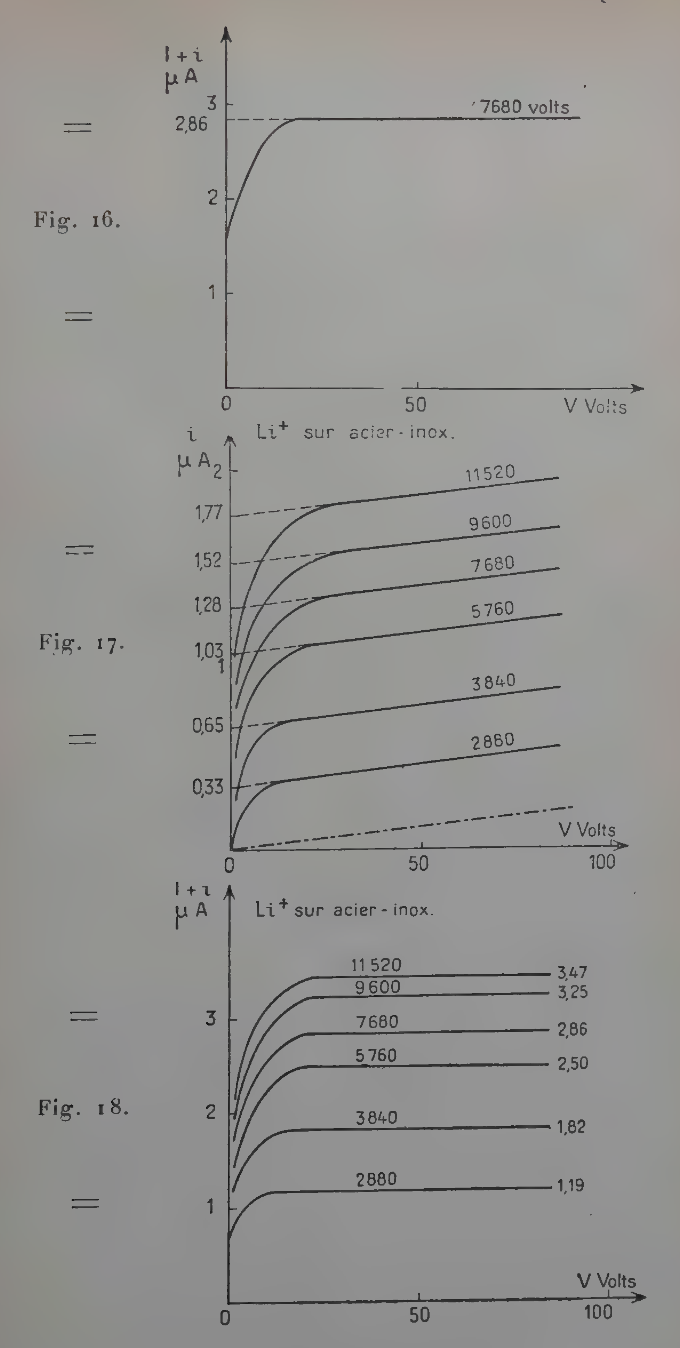


Fig. 16.

Fig. 17.

Fig. 18.

résultats expérimentaux est représenté par le tableau III. On constate que lorsque l'intensité incidente varie dans le rapport de 1 à 10, le coefficient γ présente des variations qui sont toujours inférieures

TABLEAU III

Influence de l'intensité du faisceau d'ions incidents sur l'émission secondaire électronique — Cible Mo.

Energies des ions en volts	$(I+i)_m$ en μA	i_m en μA	I_m en μA	γ	γ moyen	$\frac{\Delta\gamma}{\gamma}$
2 160	0,58 1,39 2,20 4,05 4,80	0,21 0,55 0,82 1,55 1,75	0,37 0,84 1,38 2,50 3,05	0,57 0,65 0,69 0,62 0,57	0,60	8,2 o/o
5 490	1,05 3,75 4,20 6,61 8,02 12,6	0,58 2,05 2,22 3,42 4,25 6,55	0,47 1,70 1,98 3,18 3,75 6,01	1,24 1,21 1,13 1,08 1,14 1,10	1,15	7,8 o/o
10 820	1,25 3,90 6,81 12,10 15,4	0,76 2,42 4,17 7,50 9,33	0,49 1,48 2,64 4,60 6,07	1,55 1,56 1,58 1,63 1,54	1,57	3,8 o/o

à 10 o/o. Il en résulte qu'on n'a pas à tenir compte des légères variations de l'intensité du faisceau d'ions qui interviennent au cours d'une série de mesures, soit à cause des variations d'intensité dans le filament, soit par suite des variations de I en fonction de la tension.

Précision des mesures.

Il est évident que les erreurs de lecture des intensités de courant n'interviennent pas (sauf pour les très faibles intensités) pour évaluer la précision obtenue sur la détermination de γ.

Celle-ci est conditionnée par la reproductibilité des résultats que l'on peut obtenir en recommençant les mesures sur une cible donnée après une rentrée d'air dans l'appareil, un repolissage de la cible et un nouveau pompage de l'installation à vide. Les courbes de la figure 19 reproduisent les résultats obtenus sur deux cibles, l'une de nickel et l'autre d'aluminium. Les points expérimentaux figurés par des Δ et des o ont été relevés à 48 heures d'intervalle après repolissage de la cible. On voit que tous les points se groupent bien autour de la courbe de variation de γ en fonction de l'énergie et l'on peut estimer que dans ces conditions les résultats de nos mesures concernant l'émission secondaire sont connus à 3 ou 4 o/o près.

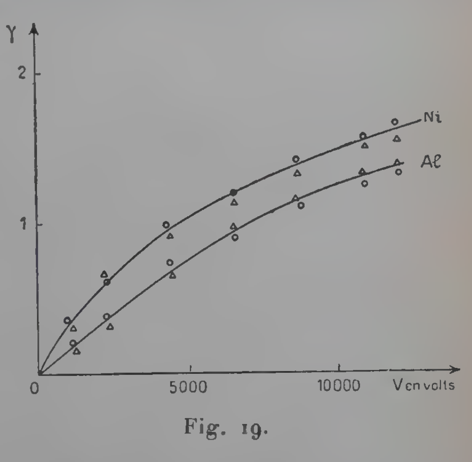


Fig. 19.

Résultats expérimentaux.

Les courbes de la figure 20 résument les résultats obtenus pour les métaux et alliages que l'on utilise généralement dans la construction des lentilles et du corps des microscopes électrostatiques : acier inox 18/8, mumétal, aluminium, duralumin, molybdène et nickel (12).

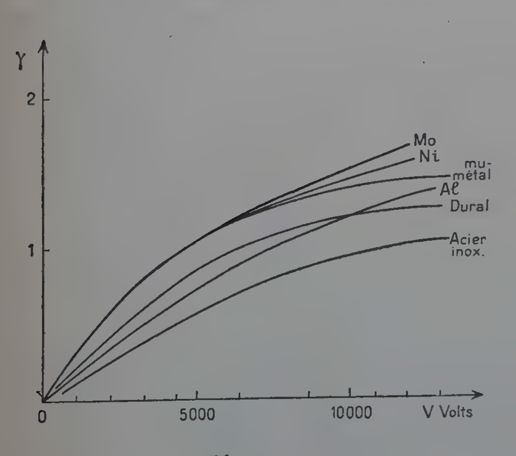


Fig. 20.

On constate que, pour les énergies utilisées, le coefficient est toujours une fonction croissante de l'énergie. La variation est plus ou moins rapide suivant le métal mais nous n'avons pu mettre en évidence, dans aucun cas, un maximum de γ. Toutefois la croissance

est de moins en moins rapide lorsque l'énergie augmente et des mesures ultérieures pour des énergies plus élevées permettront de vérifier si γ passe par un maximum pour une énergie supérieure à 13 000 volts.

Les valeurs de γ restent comprises entre 0 et 1,7 et les énergies pour lesquelles le coefficient d'émission secondaire atteint la valeur critique 1 sont comprises entre 4 500 et 11 500 volts.

Etude du coefficient de réflexion des ions sous l'incidence normale.

Dans les expériences précédentes le collecteur était polarisé positivement afin de recueillir tous les électrons secondaires. Si l'on change le sens de la différence de potentiel appliqué entre la cible et le collecteur, le champ électrique devient retardateur pour les électrons et accélérateur pour les ions positifs réfléchis par la cible. Comme précédemment on trace, pour chaque valeur de l'énergie, les deux courbes donnant les variations des courants reçus par la cible et recueillis par le collecteur en fonction du potentiel v.

Si l'on fait croître la valeur absolue de v à partir de zéro, le courant i croît au fur et à mesure que le nombre d'ions positifs collectés est de plus en plus grand et la courbe présente ensuite une portion rectiligne qui correspond à la saturation du courant d'ions réfléchis. L'extrapolation pour $v = 0$ de la partie rectiligne donnera la valeur maxima i_m du courant d'ions réfléchis.

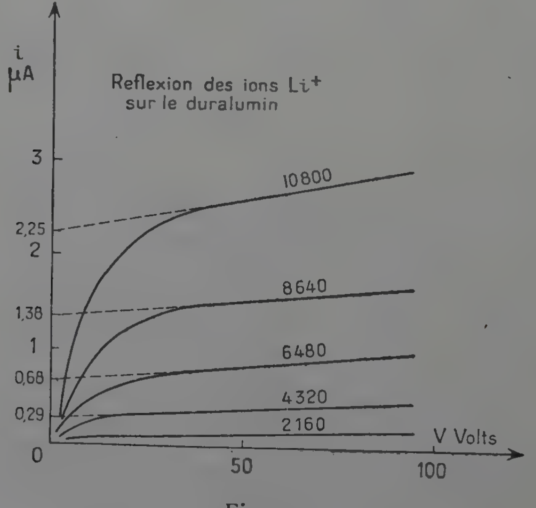


Fig. 21.

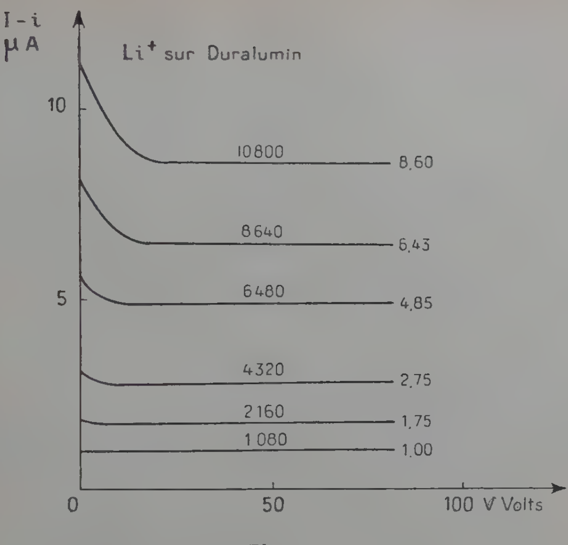


Fig. 22.

Le courant mesuré sur le circuit de la cible donne I — i. La courbe qui représente ses variations en fonction de v commence par décroître suivant une loi qui dépend des variations de i en fonction de v. Pour une polarisation négative suffisante du collecteur la courbe présente un palier rectiligne et horizontal dont l'ordonnée correspond à la valeur minima de I — i. On en déduit I et par la suite la valeur de R.

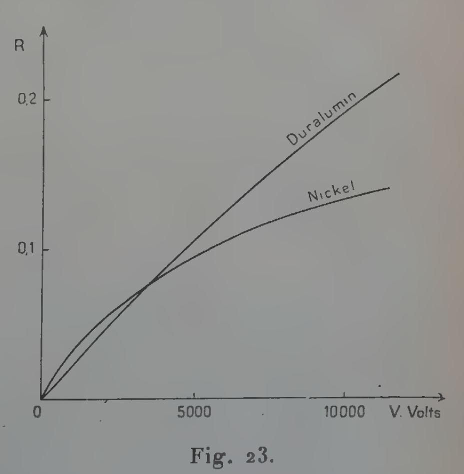


Fig. 23.

Nous discuterons dans le paragraphe suivant de la forme de la courbe $i = f(v)$ pour les faibles valeurs de v. Les réseaux de courbes des figures 21 et 22 représentent les résultats expérimentaux concernant la réflexion des ions positifs sur une cible de duralumin. La figure 23 résume les variations du coefficient R pour des cibles de nickel et de duralumin.

Jackson (17) et Paetow et Walcher (25) avaient trouvé des valeurs de R comprises entre 0,02 et 0,03 dans le cas d'ions incidents alcalins dont l'énergie ne dépassait pas 1 000 volts. Nos résultats confirment les précédents puisque nous obtenons dans le cas d'ions lithium de 1 000 volts les valeurs R = 0,032 pour le nickel et R = 0,024 pour le duralumin.

Dans le cas du duralumin la croissance de R est quasi linéaire en fonction de l'énergie jusqu'à 5 000 volts, puis un peu moins rapide et atteint la valeur 0,2 pour 10 500 volts. Le coefficient R pour le nickel va également en augmentant avec l'énergie des ions mais sa croissance est de moins en moins rapide et n'atteint que la valeur de 0,14 pour 10 500 volts.

Energie des électrons secondaires.

La plupart des expérimentateurs ayant étudié l'émission secondaire ont trouvé que l'énergie des électrons était étalée sur un spectre qui

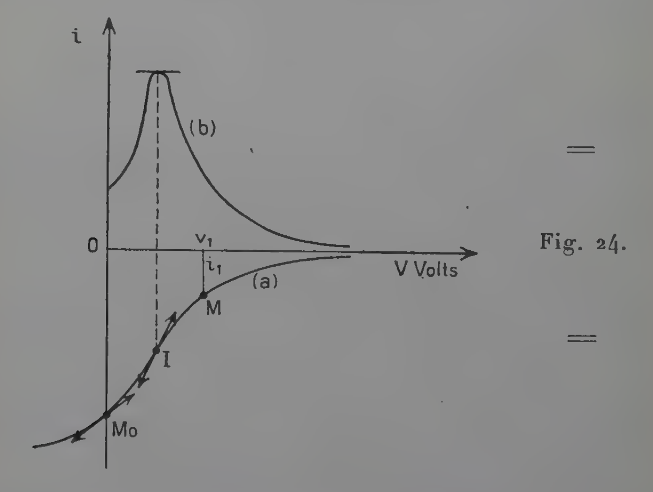


Fig. 24.

va de 0 à quelques dizaines de volts suivant les cas. Le dispositif précédemment décrit permet d'obtenir des renseignements utiles concernant le spectre d'énergie des électrons secondaires lorsqu'on l'utilise en polarisant le collecteur négativement par rapport à la cible. Si le nombre d'ions réfléchis était négligeable la courbe qui représente la variation de i en fonction de v aurait la forme a de la figure 24 en supposant que i est compté positivement lorsque le collecteur recueille des charges positives et que v est également compté positivement lorsque le potentiel du collecteur est supérieur à celui de la cible. Dans ces conditions on voit que le courant i_1, pour une

valeur v_1 de v, est proportionnel au nombre d'électrons qui peuvent atteindre C_2, c'est-à-dire qui ont une énergie (exprimée en eV) supérieure à v_1. Par suite le nombre d'électrons qui ont une énergie comprise entre v_1 et $v_1 + dv_1$ peut être représenté (à un facteur constant près) par le coefficient angulaire de la courbe a au point M. La courbe b traduit la répartition énergétique des électrons secondaires : elle partira d'une valeur non nulle correspondant à l'inclinaison de la courbe a au point M_0 et présentera un maximum correspondant au point d'inflexion I.

Dans le cas de nos expériences le nombre d'ions réfléchis n'est pas négligeable devant celui des électrons secondaires. Par suite la courbe $i = f(v)$ prend la forme indiquée par la figure 25. Le courant i est d'abord négatif, ce qui correspond, avec notre convention de signe, à l'arrivée sur le collecteur d'un courant d'électrons. Cela signifie que pour $v = 0$ le nombre d'électrons secondaires atteignant le collecteur est supérieur au nombre d'ions réfléchis collectés. A mesure que le potentiel v devient plus négatif le nombre d'électrons

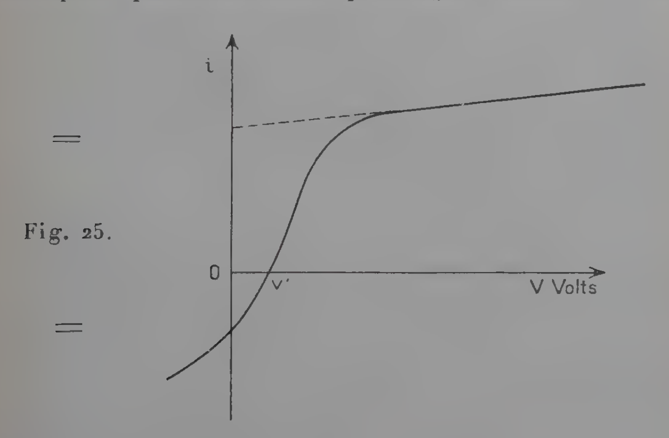


Fig. 25.

diminue et le nombre d'ions recueillis augmente. Pour une valeur particulière v' de v le courant i est nul et par suite le collecteur recueille autant d'ions positifs que d'électrons. Pour les valeurs supérieures à v' le courant d'ions prédomine de plus en plus et la courbe tend vers un palier rectiligne qui correspond à la collection de tous les ions réfléchis (13).

L'interprétation de la partie de la courbe comprise entre $v = 0$ et le début du palier est plus complexe que dans le cas précédent. Elle correspond en effet à la juxtaposition de deux phénomènes : la répulsion progressive des électrons et l'attraction croissante des ions par le collecteur. Ce n'est donc qu'en première approximation et en négligeant le nombre d'ions réfléchis vis-à-vis du nombre d'électrons

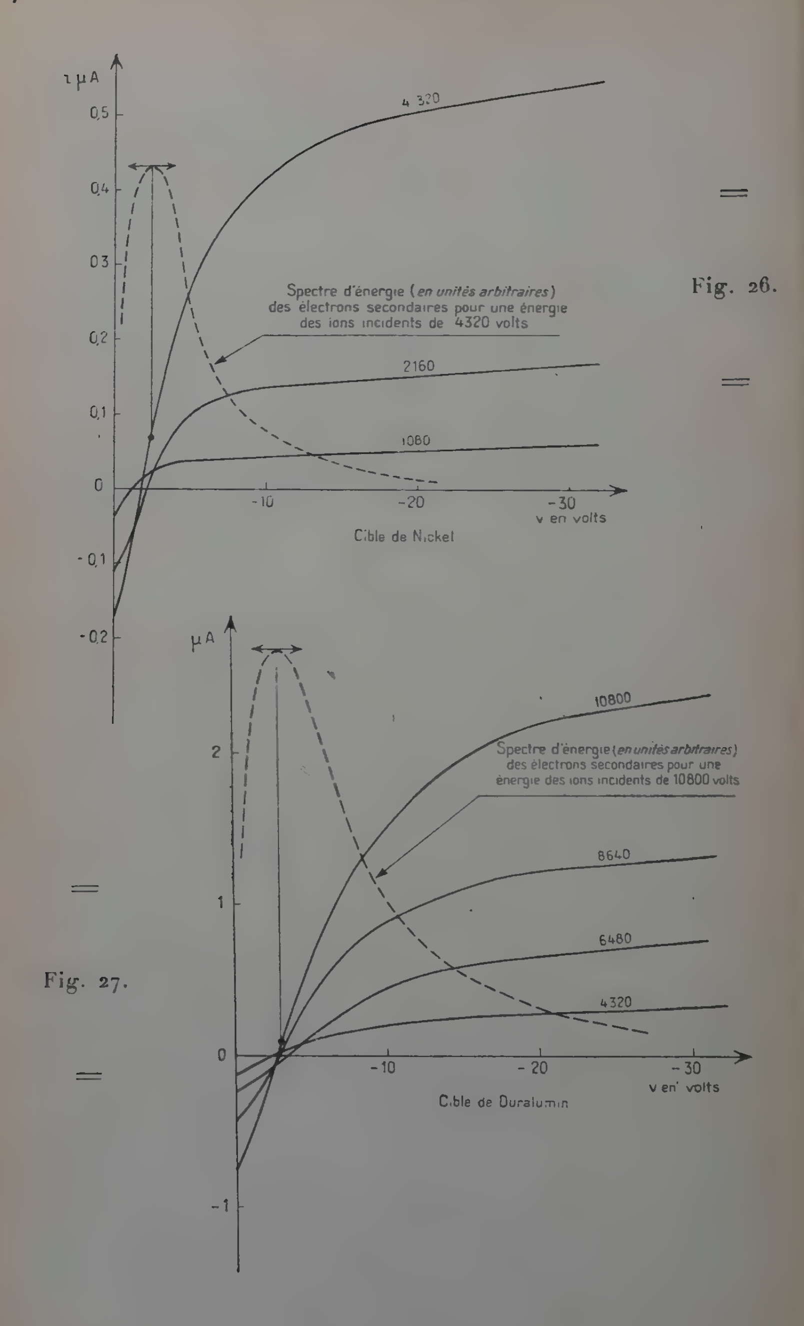

i μA
0,5
0,4
0,3
0,2
0,1
0
- 0,1
- 0,2
4 320
Spectre d'énergie (*en unités arbitraires*)
des électrons secondaires pour une énergie
des ions incidents de 4320 volts
2160
1080
-10
-20
-30
v en volts
Cible de Nickel
μA
2
1
0
-1
10800
Spectre d'énergie (*en unités arbitraires*)
des électrons secondaires pour une
énergie des ions incidents de 10800 volts
8640
6480
4320
-10
-20
-30
v en volts
Cible de Duralumin

Fig. 26.

Fig. 27.

qu'on peut déduire le spectre d'énergie des électrons secondaires par la méthode classique du champ électrique, retardateur, exposée ci-dessus. La forme des courbes $i = f(v)$ a été précisée pour les faibles valeurs de v dans le cas du nickel et du duralumin. Les résultats sont représentés par les figures 26 et 27. Dans les deux cas et pour toutes les énergies utilisées on voit que les courbes coupent l'axe ($i = 0$) pour des valeurs de v très faibles comprises entre 0 et 5 volts. Pour le nickel le rapport $\frac{R}{\gamma}$ est de l'ordre de 10 0/0; il est légèrement plus fort pour le duralumin. En négligeant ce rapport devant l'unité on peut avoir une idée de la répartition du spectre d'énergie des électrons secondaires qui est alors représenté par les courbes en pointillé des figures 26 et 27.

On peut en conclure que les électrons secondaires, pour des énergies des ions incidents comprises entre 1 000 et 13 000 volts, ont un spectre d'énergie qui est compris entre 0 et 30 volts avec un maximum compris entre 0 et 5 volts.

Il serait intéressant de séparer la contribution des électrons et des ions positifs dans la formation du courant i pour les faibles valeurs négatives de v. La méthode du champ électrique retardateur n'étant pas applicable en toute rigueur, il faudrait utiliser une méthode de séparation magnétique. C'est ce que nous comptons faire dans des expériences ultérieures.

Emission secondaire électronique du graphite et des surfaces métalliques recouvertes de graphite colloïdal. — On sait que l'émission électronique secondaire sous l'impact d'électrons primaires est fortement diminuée lorsqu'on recouvre la cible d'une couche, même très mince, de carbone. Nous avons étudié l'émission du graphite pur sous l'action d'ions positifs de lithium (cet échantillon de graphite nous a été aimablement fourni par la Société « Le Carbone Lorrain »). Le coefficient d'émission secondaire γ varie de 0,10 à 0,93 lorsque l'énergie des ions passe de 1 000 à 12 000 volts.

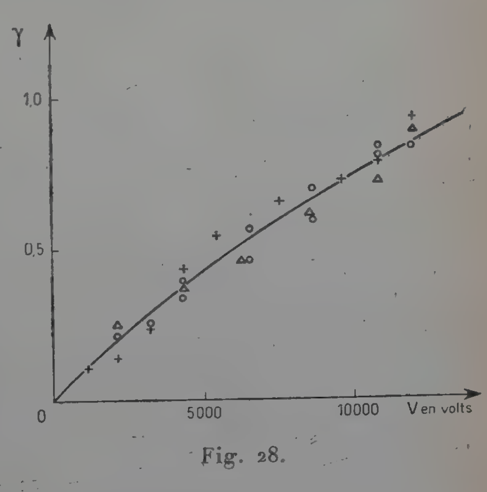


Fig. 28.

Nous avons étudié dans les mêmes conditions l'émission secondaire

de cibles d'acier inox et de duralumin recouvertes d'une couche d'aquadag (suspension de graphite colloïdal). Les résultats obtenus sont comparables à ceux que l'on obtient avec le graphite. L'ensemble des points expérimentaux pour les trois cibles est représenté par la courbe de la figure 28. La couche d'aquadag déposée sur l'acier inox et le duralumin a donc ramené la valeur de l'émission secondaire de ces cibles à la valeur qu'elle a pour la cible de graphite massif.

CHAPITRE IV

LA MICROSCOPIE IONIQUE PAR ÉMISSION

Les progrès rapides de l'optique corpusculaire ont facilité la mise au point de nombreux procédés d'observation qui se distinguent les uns des autres par la manière dont on éclaire l'objet et par la nature des particules utilisées.

L'électron a été le corpuscule le plus utilisé et les raisons de ce choix sont multiples : c'est un constituant universel de la matière dont il peut être extrait par simple élévation de température et son absorption par les différentes substances est beaucoup plus faible que celle des autres particules. Par ailleurs les trajectoires électroniques peuvent être modifiées à volonté, aussi bien par l'emploi des champs magnétiques qu'électrostatiques, et la sensitométrie des émulsions photographiques et des écrans fluorescents est bien connue. C'est pourquoi le microscope électronique est le plus répandu des microscopes corpusculaires. Les progrès très rapides réalisés en moins de 20 ans l'ont conduit à un stade de perfectionnement tel qu'il paraît difficile d'améliorer nettement son pouvoir séparateur sans modifier notablement sa conception. Il semble que la solution qui consiste à remplacer les électrons par des particules plus lourdes puisse conduire assez rapidement à des résultats intéressants. On sait en effet depuis longtemps que les longueurs d'onde associées aux ions positifs sont, à énergie égale, beaucoup plus courtes que celles qui sont associées aux électrons et devraient permettre d'atteindre des grossissements plus élevés. Il est bien connu par ailleurs que seul un microscope du type électrostatique peut être utilisé indifféremment pour les ions et les électrons, à condition de changer le signe des tensions appliquées aux lentilles.

La microscopie ionique par émission.

L'emploi d'un microscope ionique à émission a l'avantage de supprimer les interactions entre les ions incidents et l'objet, aussi est-ce un appareil de ce type que les expérimentateurs ont tout

d'abord utilisé. Les premiers travaux furent ceux de Koch et Walcher (19) qui employèrent une source d'ions constituée de tungstène fritté imprégné de chlorure alcalin et porté à haute température. L'optique était constituée de plusieurs électrodes cylindriques ayant même axe et disposées bout à bout. La mauvaise qualité des images obtenues était due en grande partie à une charge d'espace très notable. Boersch (8) utilisa par la suite la même source dans un microscope de construction plus soignée, en mettant en œuvre des tensions plus élevées pouvant atteindre 38 KV. Il obtint un pouvoir séparateur bien meilleur et put mettre en évidence le fait que l'émission d'ions n'avait lieu qu'en des points distincts de l'anode; ce résultat pouvait s'expliquer par la nature hétérogène de l'anode utilisée et par l'existence à sa surface de points d'accumulation du chlorure alcalin (probablement dans les pores et les failles du tungstène fritté). Mahl (21) se heurta aux difficultés provenant de la destruction rapide des écrans fluorescents par les ions et essaya d'utiliser pour la formation de l'image définitive les électrons secondaires émis par le choc des ions (issus de l'objet à examiner) sur une électrode auxiliaire. La source d'ions était constituée par un fil de stéatite chauffé qui émettait des ions correspondant aux impuretés alcalines. Les images obtenues, malgré leur faible grossissement, montrèrent cependant une évolution de l'émission ionique en fonction de la température. Sasaki (27) construisit en 1948 un microscope ionique dont l'anode était constituée par une surface de fer chauffée par effet Joule et recouverte d'un mélange de tungstène en poudre et de chlorure de potassium disposé en croix; cette anode composite permettait d'obtenir une image de la croix au grossissement 6. Un champ magnétique transversal dédoublait l'image ionique et permettait d'obtenir deux images décalées, l'une formée par des ions Na^+ l'autre par des ions K^+. Aucune structure ne pouvait être mise en évidence à l'interieur des images.

Dans toutes les expériences précédentes concernant la microscopie ionique par émission, les sources d'ions avaient une constitution hétérogène qui rendait difficile la préparation d'une surface émissive régulière. Or la réalisation d'une surface émissive macroscopiquement homogène et parfaitement plane est absolument nécessaire si l'on veut obtenir des images ioniques correctes représentant fidèlement l'objet émissif. Il faut éviter en effet toutes les irrégularités de la surface qui créent un astigmatisme local dont l'influence perturbatrice sur la qualité des images a été étudiée par Bertein (4).

J'ai pensé que les alumino-silicates alcalins, dont la préparation et l'émission ionique ont été étudiées dans les chapitres précédents, pouvaient être particulièrement intéressants comme sources d'ions en microscopie par émission ou par transmission Les intensités ioniques disponibles sont largement suffisantes et ces substances peuvent être préparées sous la forme de verres qui permettent d'obtenir des surfaces-objets optiquement polies.

Le dispositif expérimental.

L'appareil qui a permis d'obtenir les premières images ioniques en utilisant des sources à base d'alumino-silicate est le microscope électronique à émission du laboratoire de Radioélectricité de l'Ecole normale supérieure. Ce microscope, dont la conception et la réalisation sont dues à MM. Grivet et Vastel et dont la mise au point a été faite par MM. Septier et Gauzit, s'est prêté admirablement aux premiers essais de microscopie ionique, sans qu'il eût été nécessaire d'apporter des modifications importantes dans sa conception générale ou à son fonctionnement. La description de cet appareil a déjà été faite (16) et nous n'insisterons ici que sur les difficultés expérimentales particulières que l'on rencontre lorsqu'on veut utiliser les ions à la place des électrons.

La préparation et le chauffage de l'objet. — Dans la plupart des microscopes électroniques à émission l'objet est chauffé par effet Joule. Cette technique présente le triple inconvénient de ne s'appliquer qu'aux substances conductrices, de provoquer au voisinage de l'objet un champ magnétique parasite qui modifie la courbure initiale des trajectoires électroniques, enfin de rendre difficile le changement rapide de l'objet qui doit nécessairement comporter des contacts électriques permettant le passage de courants intenses. Le chauffage par bombardement électronique, adopté pour la première fois dans cet appareil par MM. Grivet et Vastel, évite tous ces inconvénients; dans nos expériences il présente en outre l'avantage de permettre la fusion de la substance qui doit être utilisée comme objet.

La figure 29 représente le porte-objet, qui est constitué de trois électrodes : le filament de tungstène *f* (émetteur d'électrons) qui est chauffé par un accumulateur porté à la haute tension, le wehnelt W dont la polarisation réglable permet de concentrer le faisceau électronique sur la face supérieure de l'objet, enfin le porte-objet P qui est à un potentiel positif par rapport au filament (de 0 à 6 KV). Le courant électronique de bombardement peut varier de 0 à 10 mA.

L'ensemble du porte-objet peut être déplacé verticalement de plusieurs centimètres par l'intermédiaire d'un raccord tombac : dans sa position relevée l'objet est situé à 2 cm au-dessus de la face supérieure de la lentille objectif et l'on peut aisément contrôler son chauffage et l'évolution de sa température.

a) Au début de nos expériences nous ne disposions pas d'alumino-silicate sous la forme de verre homogène. Pour préparer l'objet nous placions d'abord une petite quantité d'alumino-silicate (réduit en poudre) sur une rondelle de molybdène ou de tantale de 5/100 de millimètre d'épaisseur et de 5 mm de diamètre (fig. 29, *b*). Le bom-

bardement électronique provoquait la fusion de la substance qui adhérait alors au métal-support. Le refroidissement devait être assez lent pour éviter la formation de fissures dans la masse vitreuse constituée. Le verre obtenu était alors rodé, puis poli optiquement à l'alumine afin d'obtenir une surface parfaitement plane de quelques millimètres carrés (fig. 29, *c*), l'épaisseur devant être aussi faible que possible (quelques dixièmes de millimètre). Placé à nouveau dans le porte-objet (fig. 29, *a*) l'ensemble était porté par bombardement électronique à une température qui pouvait atteindre, si néces-

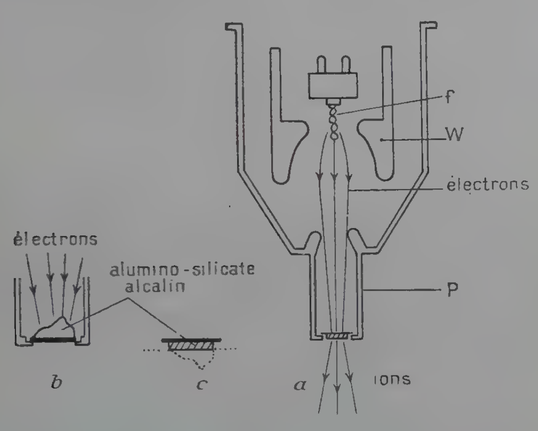


Fig. 29

saire, 2 000° C. La bonne conductibilité calorifique du métal et la faible épaisseur de l'alumino-silicate assurait une répartition uniforme de la température.

b) On peut également utiliser comme objet des rondelles d'alumino-silicates taillées dans un verre homogène obtenu au four à induction, comme il a été indiqué au chapitre premier. On dispose alors au-dessus de la rondelle-objet une lame de molybdène *l* qui est elle-même chauffée par bombardement électronique. L'opération préliminaire de fusion à l'intérieur du microscope est ainsi évitée, mais les conditions de chauffage de l'objet sont moins satisfaisantes que dans le cas précédent par suite de la difficulté que l'on a d'obtenir des lames très minces d'alumino-silicate et aussi parce que le contact thermique entre l'objet et la lame métallique chauffée est moins bon que dans le cas précédent.

Optique utilisée. — La surface plane de l'objet qui émet les ions constitue l'anode plane d'un objectif électrostatique du type Mecklenburg (22). Les deux autres électrodes sont planes et parallèles, dis-

tantes de 2 mm et percées en leur centre de trous de 2 mm de diamètre. L'image est mise au point par un mouvement mécanique parallèle à l'axe optique du système et l'exploration de cette image est obtenue par deux déplacements rectangulaires, tous deux perpendiculaires à l'axe optique du microscope.

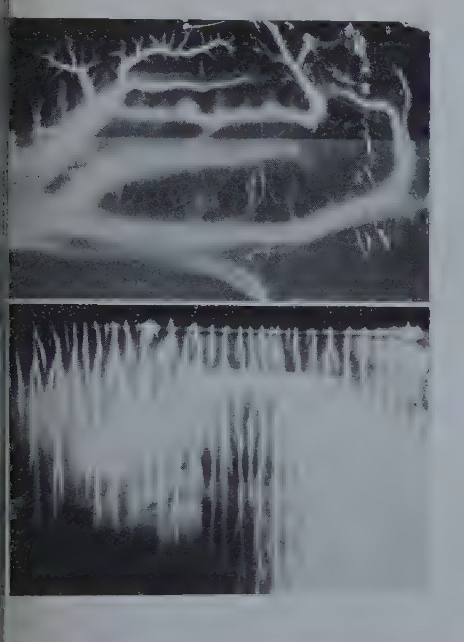
L'objet est porté à haute tension positive réglable V de 0 à 30 000 V. La première électrode de l'objectif, négative par rapport à l'objet, est portée à un potentiel $V - v$ ($0 < v < 500$ V). La deuxième électrode est au potentiel zéro.

La mise au point de l'image est dégrossie par déplacement de l'objet et achevée par le réglage de la polarisation de la première électrode. L'image formée par l'objectif est observée sur un écran fluorescent situé à 66 cm de l'objet : le grossissement direct est voisin de 150. En utilisant une lentille de projection on peut obtenir un grossissement direct de 1 500.

Vide. — Nous avons constaté qu'un vide excellent était une condition absolument nécessaire pour obtenir de bonnes images ioniques. Alors qu'on peut facilement obtenir des images électroniques pour une pression de l'ordre de 10^{-4} mm de Hg, ou même légèrement supérieure, l'utilisation des ions nécessite un vide plus poussé, de l'ordre de 10^{-5} mm de Hg. Ce résultat est difficile à obtenir dans un appareil entièrement métallique, qui comporte nécessairement un grand nombre de joints et de parties démontables ; aussi faut-il apporter un soin tout particulier au système de pompage qui doit comporter nécessairement un piège à air liquide de grande capacité entre la pompe secondaire et le microscope.

Si la pression n'est pas assez basse, il se produit une ionisation du gaz résiduel qui rend visible le faisceau d'ions sous la forme d'une gaine rouge orangée. Les ions et électrons produits par ionisation par chocs du gaz résiduel s'ajoutent aux électrons secondaires issus des électrodes et de toutes les parties de l'appareil frappées par le faisceau ionique principal, et il en résulte des courants parasites de plusieurs centaines de microampères qui empêchent de maintenir constante la haute tension et interdisent la formation de bonnes images ioniques.

Haute tension. — L'installation de haute tension (0 à 16 Kv), ainsi que le dispositif électrique de chauffage de l'objet par bombardement électronique, ont été décrits par MM. Gauzit et Septier (réf. 16, p. 115). Il a suffi de changer la polarité de la haute tension pour la rendre utilisable aux études de microscopie ionique. Nous avons eu la chance de pouvoir utiliser également une source de haute tension stabilisée de 0 à 35 Kv, destinée à la microscopie électronique, ce



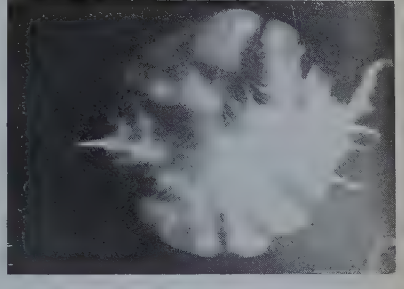


Fig. 30 *(à gauche en haut).* — Cheminements en bordure d'une région fortement exposée aux ions. Film pathélith.

Fig. 31 *(à gauche en bas).* — Stratifications à l'intérieur de la surface exposée aux ions. Film pathélith.

Fig. 32 *(à droite en haut).* — Photographie ionique dont l'aspect est faussé par l'existence des cheminements. Film pathélith.



=

Fig. 33 *(ci-contre).*

Photographie par émission obtenue avec des ions lithium. Début de l'émission, plaque B_{10}.

=

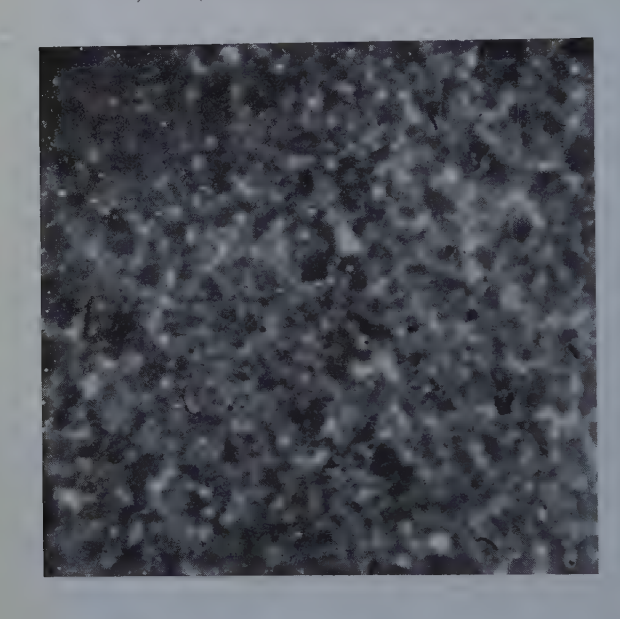
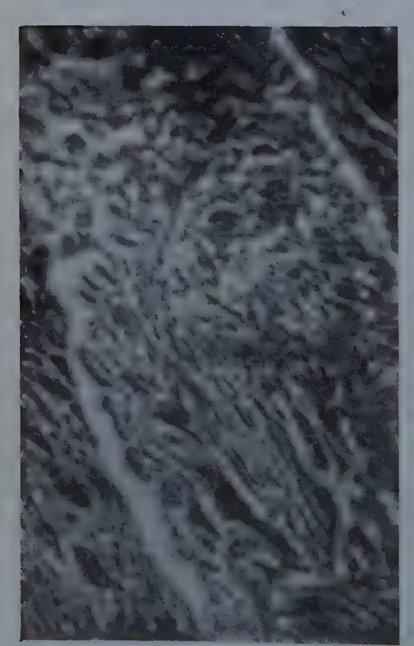


Fig. 34 (*ci-contre*). — Mêmes conditions expérimentales que pour la figure 38, mais après plusieurs minutes d'émission. Plaque B_{10}.

Fig. 35 (*en bas à gauche*). — Photo obtenue avec des ions lithium après un chauffage de 30 mn à 1 100° C. Plaque B_{10}.

Fig. 36 (*en bas à droite*). — Structure lamellaire obtenue après chauffage d'une heure à 1 100° C. Plaque Q.





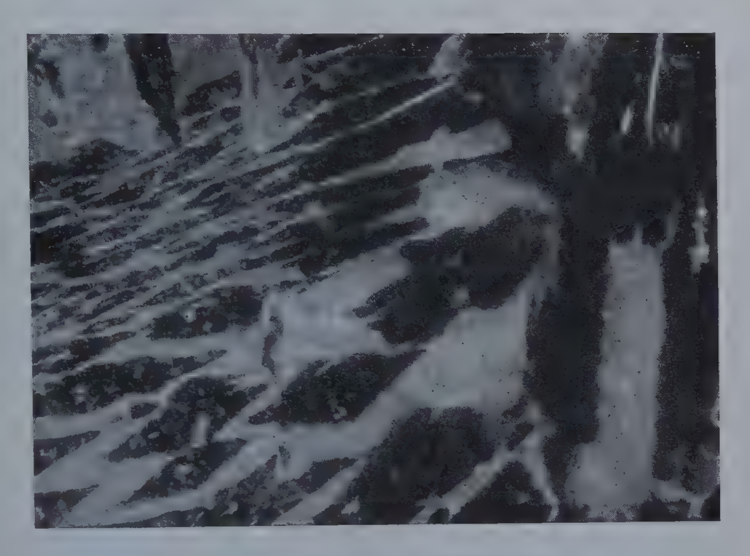


Fig. 37. — Image ionique montrant une structure nette en losange après chauffage prolongé. Plaque Q : G. direct : 150 ; G. total : 300.



Fig. 38. — Image électronique. Même objet que celui qui a été utilisé pour obtenir la photo ionique représentée fig. 42.

qui permit de faire successivement des photographies électroniques et ioniques de la même surface-objet.

Les difficultés particulières résultant de l'emploi des ions.

Les premières difficultés que l'on rencontre en microscopie ionique sont relatives à l'action des ions sur les écrans fluorescents utilisés pour l'observation directe des images et au comportement particulier des émulsions photographiques.

Ecrans fluorescents. — Les écrans habituellement utilisés en microscopie électronique sont à base de sulfure de zinc activé et l'impact des ions les détruit rapidement. Nous les avons cependant employés au début de nos expériences au cours desquelles nous étions obligés d'utiliser des courants ioniques assez intenses pour effectuer les réglages. Chaque écran n'était alors utilisable que pendant quelques minutes. Par la suite, nous avons essayé des écrans constitués d'une couche très mince d'huile à vide, déposée sur une plaque d'aluminium, qui s'est révélée fluorescente aux ions. Ces écrans résistent mieux que les écrans au sulfure de zinc; ils nous ont rendu de grands services par suite de leur grande facilité de préparation, mais ils ne sont malheureusement utilisables qu'aux fortes intensités.

Nous avons alors recherché des écrans ayant une grande luminosité initiale, présentant une faible décroissance de cette luminosité avec le temps et ayant enfin une conductibilité électrique suffisante pour que les charges électriques puissent s'écouler facilement à leur surface.

La luminosité dépend du produit fluorescent étudié (composition chimique, structure physique et présence « d'activants »); pour un produit donné elle est, en général, d'autant plus grande que les cristaux sont plus gros, mais on est limité par la nécessité de conserver à l'écran une granulation assez fine pour qu'elle ne limite pas le pouvoir séparateur qui, en microscopie électronique par émission, atteint 0,1 μ. Dans ces conditions, si l'on veut que les images de deux points séparés par l'objectif (grossissement direct 150, par exemple) se forment sur deux cristaux distincts de l'écran il faut que le diamètre de ces derniers soit nettement inférieur à 15 μ. Bien que le pouvoir séparateur en microscopie ionique par émission soit, pour l'instant, supérieur à 0,1 μ il est bon de n'utiliser que des cristaux fluorescents de diamètre inférieur à une dizaine de microns.

Après de nombreux essais sur des produits de provenance diverse nous avons adopté les écrans au tungstate de Ca (type B40 de la

Société S. A. P. C. E.; diamètre moyen des grains 2 à 5 μ) et les écrans au sulfure de zinc et de cadmium (sulfure de télévision orange de la Société Gignoux : diamètre moyen des grains 5 à 10 μ).

Emulsions photographiques. — Au début de nos expériences nous avons eu les plus grandes difficultés à obtenir avec les émulsions photographiques des images représentant fidèlement les structures observées visuellement sur l'écran fluorescent.

Nous avons d'abord essayé d'utiliser les films Pathelith de la Maison Kodak avec lesquels on obtient d'excellentes images en microscopie électronique. Les résultats furent décevants. Les films se chargeaient électriquement, dans les régions recevant un courant ionique intense, ce qui provoquait ultérieurement une déviation du faisceau incident vers les régions où aucun ion n'était encore tombé. Il y avait donc une déformation de l'image, pendant la durée de l'exposition du film, qui rendait impossible l'obtention d'une bonne photographie. Par ailleurs nous avons observé de curieux phénomènes de cheminements à l'intérieur de l'émulsion, phénomènes qui sont certainement en relation avec la neutralisation progressive des charges locales produites par le faisceau. La description des différents types de cheminements que nous avons rencontrés a déjà été faite dans un article précédent (14). La figure 30 représente, par exemple, un cheminement constitué de branches larges en bordure d'une région du film fortement exposée aux ions, tandis que la figure 31 représente des stratifications assez fines à l'intérieur même de la surface exposée, ces stratifications étant toujours perpendiculaires ou parallèles aux bords du film. La figure 32 montre la première photographie ionique d'une surface plane d'alumino-silicate de lithium, dont l'aspect est entièrement faussé par la présence des cheminements.

L'impossibilité d'utiliser les émulsions habituellement employées en microscopie électronique nous a conduit à essayer systématiquement un certain nombre d'émulsions et particulièrement celles qui avaient déjà été utilisées en spectrographie de masse. En définitive, ce sont les plaques Q de la Maison Ilford et les plaques Schuman, type B_{10} de la Maison Kodak qui nous ont donné les meilleurs résultats.

Résultats expérimentaux : l'émission ionique en relation avec la structure de l'objet.

En utilisant les différentes techniques que nous venons de décrire il nous a été possible d'obtenir des images ioniques par émission dont la qualité est comparable à celle des images électroniques. L'utilisation des sources solides à base d'alumino-silicates alcalins

nous a permis de prendre comme objet une surface homogène parfaitement polie où l'émission peut se produire en n'importe quel point; les structures qui apparaissent sur les images révèlent alors des différences dans les propriétés émissives des points de l'objet, sans que l'on puisse attribuer ces différences à des variations de concentration de la substance active (responsable de l'émission ionique) comme cela peut se produire dans les sources à structure hétérogène de Boersch et des différents expérimentateurs qui nous ont précédé.

Les photographies contenues dans ce mémoire ont été réalisées avec une source solide de Li_2O, Al_2O_3, $2SiO_2$ émettant des ions Li^+ et contenant les ions Na_{23}, K_{39} et K_{41} à titre d'impuretés. Nous n'avons utilisé que l'objectif qui donne un grossissement direct de 150, mais des agrandissements photographiques nous ont permis d'obtenir des grossissements de 250 et 500.

Nous avons étudié l'objet au microscope métallographique optique, avant et après son utilisation comme source d'ions et nous avons pu ainsi constater que les structures qui étaient mises en évidence par l'intermédiaire des ions n'étaient pas dues à des modifications mécaniques de la substance consécutives au polissage ou à des craquelures produites pendant le traitement thermique.

La figure 33 montre une première photographie ionique d'une surface plane constituée par une rondelle d'alumino-silicate de lithium. Elle correspond au début de l'émission ionique : les points émissifs sont peu nombreux et on y distingue des craquelures accidentelles du verre qui diffèrent très nettement des vraies structures qui apparaissent sur les autres clichés.

La photographie de la figure 34 a été prise au début du chauffage de l'objet en utilisant des plaques B_{10}. On constate que l'émission ionique n'est pas uniforme mais se produit en des points assez régulièrement répartis à la surface de l'objet comme cela se produit également pour l'émission électronique, mais nous verrons que ce ne sont pas les mêmes points de l'objet qui sont responsables des deux émissions.

Nous avons pu mettre en évidence l'apparition puis l'évolution d'une structure de la surface de l'objet en fonction du temps après de nombreux chauffages suivis de rentrées d'air dans l'appareil. La figure 35 montre l'aspect de la surface après un chauffage à 1 100° C pendant une demi-heure environ. L'image ionique fait apparaître nettement une structure assez régulière, que nous avons retrouvée à plusieurs reprises. La bande transversale large qui traverse la photographie correspond à une craquelure. Cet aspect a évolué et la structure s'est précisée progressivement pour aboutir à l'aspect de la figure 36, après une heure de chauffage environ, dans laquelle apparaît très nettement une structure lamellaire dont les différentes orientations caractéristiques variaient d'ailleurs d'un point à l'autre de l'objet.

Le même objet, examiné plusieurs mois après, toujours aux environs de 1 100° C, a révélé une structure encore plus nette à base de losanges plus ou moins déformés qui sont représentés par la figure 37 (photo prise sur plaque Q_2). La figure 38 montre enfin l'image électronique de la même surface qui est nettement différente de l'image ionique. Les alumino-silicates présentent en effet la propriété intéressante d'avoir une émission électronique suffisante qui permet d'obtenir aussi bien des images électroniques que ioniques, en changeant la polarité de la source de haute tension qui alimente le microscope.

La plupart des photographies précédentes ont été obtenues pour des tensions d'accélération des ions comprises entre 15 000 et 25 000 volts. Le pouvoir séparateur théorique du microscope corpusculaire à émission est donné par la formule :

$$\mathcal{E} = k . \frac{\Delta V}{E}$$

dans laquelle k caractérise l'objectif, E représente le champ électrostatique sur la cathode et ΔV l'énergie la plus probable à l'émission des corpuscules qui sont utilisés pour former l'image. Bien que l'on possède peu de renseignements sur le ΔV relatif aux ions alcalins il semble qu'on puisse admettre une valeur de même ordre que celle qui correspond aux électrons, soit une petite fraction d'électron-volt. Le pouvoir séparateur théorique du microscope ionique à émission devrait donc être sensiblement égal à celui du microscope électronique. En réalité les meilleurs pouvoirs séparateurs en microscopie électronique par émission ont été obtenus par Septier (0,1 μ) et les meilleurs photos ioniques correspondent à un pouvoir séparateur de 0,6 μ. Il paraît certain que l'on pourra réduire cet écart à l'avenir en faisant une étude plus soignée des émulsions et en employant en outre un objectif correspondant à une valeur de E plus grande.

Ces expériences ont démontré qu'il était possible d'utiliser la microscopie ionique par émission pour obtenir des images qui traduisent la structure de l'objet émissif. Elles ont montré en outre que cette structure évoluait en fonction du temps et dépendait en tout premier lieu des traitements thermiques subis par la surface. C'est la première fois que l'on met en évidence le fait important que l'émission ionique d'un solide dépend de l'orientation cristallographique de sa surface. Ce résultat permet de prévoir que la microscopie ionique par émission pourra jouer vis-à-vis des verres et de toutes les substances qui émettent des ions le même rôle que celui réservé à la microscopie électronique dans l'étude des structures des métaux et alliages portés à haute température. Il semble qu'on puisse raisonnablement espérer que cette nouvelle technique permettra en particulier de préciser la structure des corps à l'état vitreux qui est encore si mal connue à l'heure actuelle.

CHAPITRE V

ÉTUDE DES SOURCES SOLIDES IONIQUES AU SPECTROMÈTRE DE MASSE

Les résultats du chapitre II ne concernent que l'émission globale des ions émis par les sources solides. Nous avons fait une étude rapide de ces sources au spectromètre de masse dont le but était surtout de préciser la nature des ions émis et l'évolution de l'émission en fonction du temps. L'appareil qui nous a servi est le spectromètre du laboratoire de Radioélectricité de l'Ecole normale qui a été réalisé par M. Beaussier.

Dispositif expérimental : mesure de la température.

La source solide utilisée dans le spectromètre est d'une extrême simplicité. Elle consiste simplement en un fil de tungstène de 15/100 de millimètre de diamètre, tendu parallèlement à la fente d'entrée de l'appareil et portant une très faible quantité de la substance à analyser. Celle-ci, d'abord réduite en poudre, est additionnée d'une faible quantité d'eau distillée, puis étendue sur la partie centrale du fil. Un chauffage sous vide permet de rassembler la substance active sous la forme d'une petite boule vitrifiée de quelques dixièmes de millimètre de diamètre qui joue un rôle de source ponctuelle.

Dans l'impossibilité où nous nous trouvions de mesurer la température de la boule émissive lorsqu'elle était placée à l'intérieur du spectromètre nous avons fait des mesures préliminaires en plaçant la source dans une cloche à vide et en étudiant au pyromètre Ribaud (à une pression identique à celle qui règne dans le spectromètre) l'évolution de la température en fonction de l'intensité du courant de chauffage. Bien que la relation température-courant de chauffage soit la même pour des fils nus de même nature et de même section, la courbe d'étalonnage n'est valable que pour le fil qui a servi à la construire car la présence de la boule d'alumino-silicate, dont le diamètre ne peut être fixé *a priori*, perturbe la répartition de la température du fil. Lorsqu'on passait d'une valeur de courant de chauffage à une valeur différente l'équilibre thermique était atteint au bout d'une minute.

Le spectromètre utilisé, qui est dérivé de celui qui a déjà été réalisé par MM. Bertein et Vastel (5), sera décrit ultérieurement par son auteur. Il suffira de signaler ici que les faisceaux d'ions légèrement divergents issus de la fente-source et accélérés sous une tension V traversent un champ magnétique en forme de secteur circulaire qui

a pour effet d'assurer la focalisation des faisceaux correspondant aux différents isotopes et de réaliser leur séparation. La focalisation se produit sur la fente d'un collecteur qui est aligné avec la fente-source et le centre du secteur magnétique. On peut faire défiler les différents ions sur la fente du collecteur soit par balayage électrostatique (variation continue de V), soit par balayage magnétique (variation continue du champ magnétique). Le courant d'ions arrivant sur l'électrode isolée du collecteur est reçu sur une lampe électromètre et polarise la grille de cette lampe en s'écoulant à travers une résistance de fuite élevée et connue. La lampe électromètre est connectée à un amplificateur à courant continu à faible impédance de sortie qui permet de mesurer le courant ionique à l'aide d'un galvanomètre sensible. La gamme des courants mesurables s'étendant de 10^{-14} à 10^{-10} A, on voit qu'il est possible de repérer des pics correspondant à des isotopes dont l'abondance relative est de 1 à 10^4.

Nature des ions émis : évolution en fonction du temps et de la température.

Notre but était de rechercher l'importance relative des différents isotopes émis par la source et l'évolution de l'émission de l'ion principal en fonction du temps. Nous avons surtout étudié les aluminosilicates de lithium et de sodium préparés au four solaire dans des conditions où une contamination des produits en cours de préparation était impossible. Les seules impuretés provenaient donc de l'existence d'ions étrangers dans la composition initiale des produits. Nous avons précisé dans le chapitre premier l'importance relative de ces impuretés.

Le résultat important est le suivant : aux basses températures et au début de l'émission les intensités ioniques correspondant aux impuretés sont supérieures à celles de l'ion principal, bien que leurs concentrations soient très faibles. Si on étudie l'évolution de ces courants en fonction du temps on constate que l'émission des ions parasites décroît régulièrement alors que celle de l'ion principal augmente. La figure 39 est caractéristique à cet égard. Elle montre l'importance relative, à basse température, de l'émission des isotopes K_{39} et K_{41} dans une source dont l'ion principal est Na_{23}. On voit qu'au début de l'émission ce sont les impuretés qui prédominent mais leur émission s'épuise rapidement lorsque le chauffage se prolonge.

Si on augmente la température on constate que l'importance relative des ions parasites par rapport à l'ion principal diminue rapidement. En réalité il est difficile de faire des mesures simultanées sur les différents isotopes sans que le facteur temps intervienne, mais nous avons constaté qu'alors que l'épuisement des impuretés pouvait

demander plusieurs heures aux plus basses températures (aux environs de 500° C), il était terminé après quelques minutes seulement

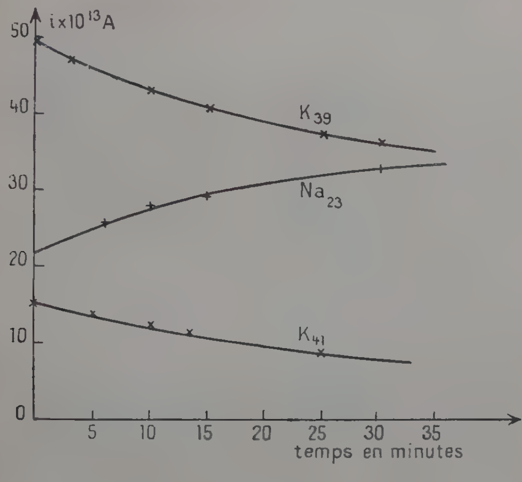


Fig. 39.

aux températures voisines du point de fusion de l'alumino-silicate. La figure 40 donne les résultats relatifs à l'émission d'un alumino-

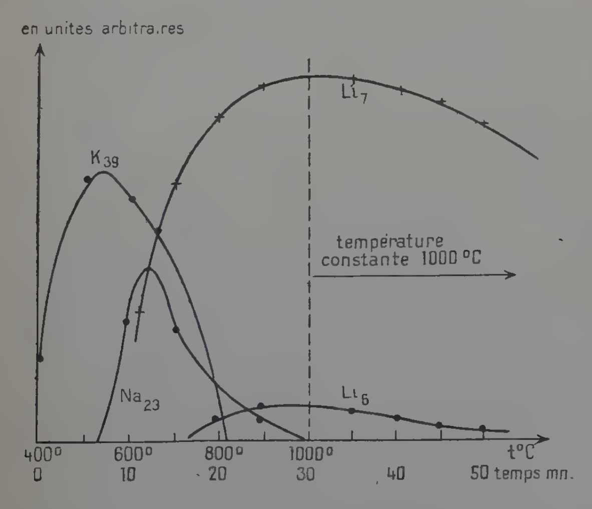


Fig. 40.

silicate de lithium. On constate que pour des températures inférieures à 650° C l'émission des impuretés K_{39} et Na_{23} est notablement supérieure à celle de l'ion principal. Au-dessus de cette température l'émission des ions parasites décroît très vite alors que celle des ions Li_7 et Li_6 augmente rapidement. Au-dessus de 1 000° C, l'émission de lithium est pratiquement pure. Si on fixe alors la température et qu'on étudie l'évolution de l'émission de l'ion principal en fonction du temps on constate une décroissance régulière. En réalité lorsqu'on étudie l'émission de l'ion principal dès le début du chauffage (en conservant fixe la température) on constate d'abord une croissance de l'émission qui passe ensuite par un maximum pour décroître ensuite lentement sans qu'il soit possible d'arriver à un épuisement total. Le maximum est d'autant plus accusé que la température est plus basse, si bien qu'à haute température l'émission de l'ion principal est pratiquement constante (3).

En résumé on voit que si l'on veut obtenir une émission pure d'ions étrangers en utilisant les alumino-silicates alcalins il faut procéder à un chauffage préalable de la source, au cours duquel les impuretés s'éliminent progressivement, et opérer à température aussi élevée que possible.

Le microscope ionique à émission utilisé comme spectrographe de masse.

Des travaux récents de Sasaki (27) et de Gauzit (15) ont montré qu'il était possible de faire agir un champ magnétique pour obtenir l'analyse de faisceaux d'ions focalisés dans un microscope : il suffit de créer ce champ magnétique dans la région située au-dessous de la lentille de projection. Nous avons essayé d'utiliser le microscope ionique à émission pour obtenir de cette façon des spectres de raies.

Le schéma de principe du montage utilisé est donné par la figure 41. La lentille L_1 donne de la source d'ions une image intermédiaire qui se projette sur la fente-source S. Le projecteur L_2 donne de cette fente une image centrale définitive. En faisant agir le champ dans la région H on obtient le spectre de masse constitué d'autant de raies qu'il y a d'isotopes dans le faisceau. En inversant le sens du champ magnétique on obtient un spectre symétrique du précédent par rapport à la raie centrale.

L'objectif qui a servi à obtenir les images ioniques ne convient pas pour cette étude car il donne une image qui est située très près de la lentille L_2, ce qui ne permet pas de placer la fente-source. Nous l'avons remplacé par un objectif de construction très simple représenté à l'échelle 1/1 par la figure 42. Il comporte deux électrodes planes percées de trous circulaires de 10 mm de diamètre, isolées l'une de l'autre par un manchon en plexiglass, l'écartement des électrodes étant de 15 mm. L'électrode inférieure est vissée directement

sur le bloc-lentilles ; l'électrode supérieure est portée à une tension variable V_1. La focalisation du faisceau sur la fente se fait par déplacement du porte-objet et ajustage de la tension V_1. La tension varia-

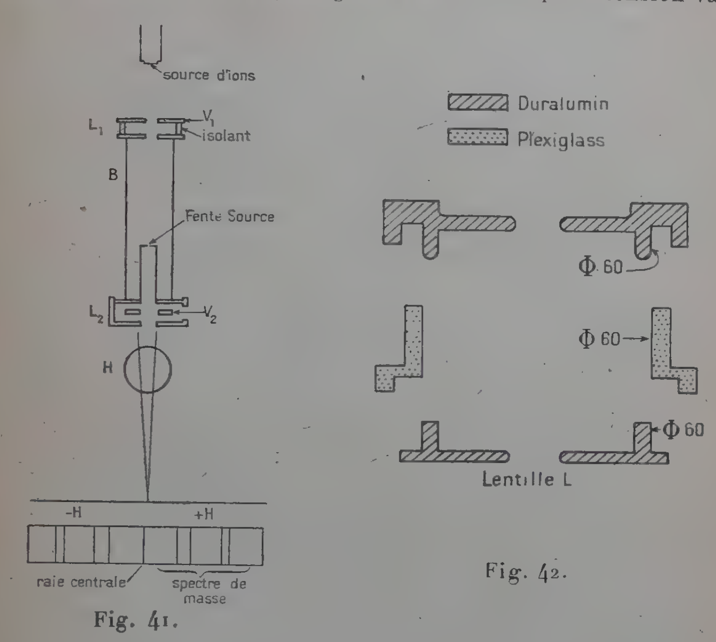


Fig. 41.

Fig. 42.

ble V_2, appliquée à l'électrode centrale du projecteur, permet de réaliser la mise au point définitive de l'image de la fente sur l'écran.

La fente-source est constituée de deux lèvres en acier inox taillées en biseau. Les réglages relatifs au parallélisme des bords de la fente et à la mesure de sa largeur se font sous un microscope optique avant de placer la fente à l'intérieur du bloc-lentilles. On peut réaliser

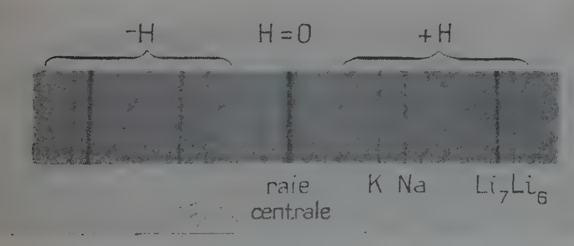


Fig. 43.

ainsi facilement une fente de 1 cm de long et dont la largeur est de 2/100 de millimètre.

Le spectre de raie représenté par la figure 43 montre les résultats

que l'on peut obtenir par cette méthode. La source est un alumino-silicate dont l'ion principal est le lithium et qui contient également du sodium et du potassium. On distingue nettement les deux raies Li_6 et Li_7, la raie Na_{23} et les deux raies K_{39} et K_{41} confondues. De nombreux spectres analogues ont pu être réalisés sur plaques Q avec des temps de pose inférieurs à la seconde. Le champ magnétique, peu intense, était produit par un électro-aimant droit placé à l'extérieur du microscope, donc assez loin du faisceau d'ions.

On remarquera que les bords des raies sont très nets et qu'il n'existe pratiquement pas d'ions diffusés ou ralentis. Ce premier montage peut être facilement amélioré. Le faisceau ionique qui tombe sur la fente-source a une symétrie de révolution et sa section par le plan de cette fente est un cercle; une faible partie seulement des ions est donc utilisée. Une étude plus soignée des conditions de focalisation, et particulièrement l'emploi d'une lentille objectif avec des électrodes planes percées de diaphragmes en forme de fentes, permettra de projeter sur la fente-source une focale du faisceau ionique. La luminosité de l'appareil sera considérablement augmentée et il sera possible d'utiliser une fente plus étroite de quelques μ de largeur tout en abaissant le temps de pose à quelques dixièmes de seconde. Un tel appareil, qui comportera nécessairement un parcours assez court des ions dans la région où règne le champ magnétique, aura un pouvoir séparateur certainement inférieur à celui des spectrographes de masse à double focalisation. Par contre sa grande luminosité, permettant des temps de pose très courts, permettra de l'utiliser dans la recherche d'isotopes présents en faible quantité dans la source.

Le nouveau microscope à émission en cours de montage à Alger comporte dans sa partie inférieure des ouvertures qui permettront le passage des pièces polaires d'un électro-aimant créant à l'intérieur de l'appareil un champ magnétique intense et homogène. Il permettra de perfectionner cette nouvelle méthode de spectrographie de masse et de préciser son champ d'applications.

CONCLUSIONS

Nous avons précisé dans le chapitre premier les conditions de préparation des sources solides ioniques à base d'alumino-silicates alcalins en utilisant soit un four à induction soit un four solaire.

Nous avons exposé ensuite les résultats expérimentaux concernant l'émission ionique globale des sources solides de Li, Na et K en soulignant le rôle très important joué par les phénomènes de charge d'es-

pace. Des intensités ioniques de plusieurs mA/cm² ont été obtenues et nous avons montré que la loi de Richardson s'appliquait à ces émissions.

La réalisation d'un canon à ions de construction très simple nous a permis d'étudier l'émission électronique secondaire des différents métaux et alliages utilisés en microscopie électronique, sous l'impact d'ions de Li. Dans une gamme d'énergie s'étendant jusqu'à 13 000 volts nous avons précisé l'influence, sur le rendement γ de l'émission électronique secondaire de l'intensité du faisceau d'ion incident et de la nature de la cible. Nous avons également déterminé la variation du coefficient R de réflexion des ions (sous l'incidence normale) en fonction de l'énergie des ions incidents. Nous avons enfin montré que dans tous les cas le spectre d'énergie des électrons secondaires ne s'étendait pas au delà de 30 volts, avec un maximum compris entre 0 et 5 volts. Le graphite pur et les surfaces métalliques recouvertes de graphite colloïdal sont caractérisés par une valeur de γ nettement inférieure à celle des métaux purs ou des alliages, comme cela se produit dans tous les cas de l'émission électronique secondaire sous l'impact d'électrons.

Nous avons montré ensuite que le microscope électronique à émission pouvait facilement, grâce à l'emploi des sources solides, être transformé en microscope ionique. Après avoir mis au point les techniques de préparation de l'objet, nous avons résolu un certain nombre de problèmes concernant les écrans fluorescents et les émulsions photographiques ce qui nous a conduit à la réalisation d'images ioniques à partir de surfaces homogènes, planes et parfaitement polies. Ces images ont révélé pour la première fois que l'émission ionique d'un solide dépend de l'orientation cristallographique de sa surface et nous avons pu mettre en évidence l'évolution de la structure de cette surface en fonction des traitements thermiques et du temps. Un autre résultat important résulte du fait que les points de la surface qui émettent les ions sont certainement différents de ceux qui sont responsables de l'émission électronique.

Dans le chapitre V, nous avons étudié au spectromètre de masse la nature des différents isotopes émis par les sources solides et leur importance relative. Nous avons montré en particulier que les impuretés sont émises au début de l'émission et qu'à basse température leur émission surpasse souvent celle de l'ion principal. Leur épuisement en fonction du temps est d'autant plus rapide que la température est plus élevée.

Nous avons enfin décrit une expérience qui montre qu'on peut facilement transformer le microscope ionique à émission en spectrographe de masse pour obtenir, avec des temps de pose très courts, des spectres de raies.

Nous espérons que le travail expérimental dont nous venons d'exposer les résultats fera mieux connaître les conditions d'emploi et les

multiples possibilités d'utilisation des sources solides d'ions alcalins. La focalisation des faisceaux d'ions, qui ne met en œuvre que des dispositifs classiques déjà réalisés en microscopie électronique électrostatique, pourra être utilisée avec profit dans des domaines très variés.

Nous n'avons pas parlé ici de nos recherches relatives à la pulvérisation cathodique et à « l'etching » des surfaces dans les vides poussés, avec source d'ions indépendante, ni de celles qui concernent l'engagement des atomes dans les faisceaux d'électrons. Ces recherches, dont certaines sont à l'origine du présent travail, n'ont pu être conduites normalement à leur terme par suite de l'imperfection et de l'insuffisance des moyens de focalisation des ions dont nous disposions dans le passé.

Les résultats exposés ici, ainsi que tous ceux qui ont été obtenus en microscopie ionique sous la haute direction de M. le Professeur Grivet, permettront à l'avenir d'attaquer ces problèmes avec le maximum d'efficacité.

BIBLIOGRAPHIE

1. Baimbridge. — *Journ. of Frank. Inst.*, 1931, **212**, 317.
2. Barnes. — *Phys. Rev.*, 1932, **40**, 1044.
3. Beaussier et Couchet. — *C. R. Acad. Sci.*, 1953, **236**, 1417.
4. Bertein. — *Journ. Phys. Rad.*, 1953, **14**, 235.
5. Bertein et Vastel. — *Ann. Radio-Elect.*, 1949, IV, **18**, 269.
6. Blewett et Jones. — *Phys. Rev.*, 1936 [2], **50**, 464.
7. Blewett et Jones. — *Phys. Rev.*, 1936 [2], **50**, 466.
8. Boersch. — *Experentia*, 1948, **4**, 1.
9. Couchet. — *C. R. Acad. Sci.*, 1953, **236**, 1240.
10. Couchet. — *C. R. Acad. Sci.*, 1951, **233**, 1013.
11. Couchet. — Diplôme Etud. Sup. Paris, 1935.
12. Couchet. — *C. R. Acad. Sci.*, 1952, **235**, 944.
13. Couchet. — *C. R. Acad. Sci.*, 1953, **236**, 1862.
14. Couchet, Gauzit et Septier. — *Bull. Micros. Appl.*, 1952, **2**, 85.
15. Gauzit. — *A paraître.*
16. Gauzit et Septier. — *Bull. Micr. Appl.*, 1951, **1**, 109.
17. Jackson. — *Phys. Rev.*, 1926, **28**, 524; 1927, **30**, 473.
18. Jones et Hendricks. — *Phys. Rev.*, 1933 [2], **44**, 707.
19. Koch et Walcher. — *Zeit. Phys.*, 1935, **97**, 131.
20. Kunsman. — *Journ. Frank. Inst.*, 1927, **203**, 635.
21. Mahl. — *Zeits. Phys.*, 1938, **108**, 771.
22. Mecklemburg. — *Zeits. Phys.*, 1942, **21**, 120.
23. Moon. — *Proc. Cambr. Phil. Soc.*, 1932, **28**, 490.
24. Murawkin. — *Ann. der Phys.*, 1931, **8**, 385.

25. Pactow et Walcher. — *Zeit. Phys.*, 1938, **110**, 69.
26. Richardson. — *Proc. Roy. Soc.*, 1914, **89**, 507.
27. Sasaki. — *J. O. A. P.*, 1948, **19**, 1050.
28. Schmidt. — *Ann. der Phys.*, 1924, **75**, 337 ; 1927, **82**, 664.
29. Smith. — *Phys. Rev.*, 1929, **33**, 279.
30. Smith. — *Phys. Rev.*, 1930, **35**, 381.
31. Smythe et Hemmendinger. — *Phys. Rev.*, 1937, **51**, 178.
32. Wahlin. — *Phys. Rev.*, 1931, **37**, 467.
33. Wolfers. — *Journ. de Phys.*, 1919, **9**, 95.

TABLE DES MATIÈRES
DU TOME 9

Le Gérant : G. Masson.

DÉPÔT LÉGAL : 1954, 4e TRIMESTRE, No D'ORDRE 1907, MASSON ET Cie, ÉDITEURS, PARIS
BARNÉOUD FRÈRES ET Cie, IMPRIMEURS (31.0566), LAVAL, No 3048. — 12-1954.